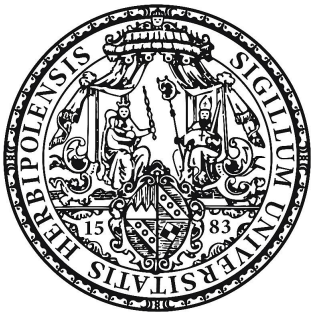
Nichtmagnetische Isolatoren in Hexagonalen Gittermodellen



Dissertation zur Erlangung des
naturwissenschaftlichen Doktorgrades
der Julius-Maximilians-Universität Würzburg

vorgelegt von

Manuel Laubach

aus Freilassing

Würzburg, 2014

CC BY NC ND

Eingereicht am: 16.04.2014
bei der Fakultät für Physik und Astrophysik

1. Gutachter: Prof. Dr. Werner Hanke
2. Gutachter: Prof. Dr. Ewelina M. Hankiewicz
3. Gutachter: _____
der Dissertation

Vorsitzender: Prof. Dr. Friedrich Reinert
1. Prüfer: Prof. Dr. Werner Hanke
2. Prüfer: Prof. Dr. Ewelina M. Hankiewicz
3. Prüfer: Prof. Dr. Hartmut Buhmann
im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 28.11.2014

Doktorurkunde ausgehändigt am: _____

Kurzfassung

Wir untersuchen zunächst das Hubbard-Modell des anisotropen Dreiecksgitters als effektive Beschreibung der Mott-Phase in verschiedenen organischen Verbindungen mit dreieckiger Gitterstruktur. Um die Eigenschaften am absoluten Nullpunkt zu bestimmen benutzen wir die variationelle Cluster Näherung (engl. *variational cluster approximation* VCA) und erhalten das Phasendiagramm als Funktion der Anisotropie und der Wechselwirkungsstärke. Wir finden für schwache Wechselwirkung ein Metall. Für starke Wechselwirkung finden wir je nach Stärke der Anisotropie eine Néel oder eine 120°-Néel antiferromagnetische Ordnung. In einem Bereich mittlerer Wechselwirkung entsteht in der Nähe des isotropen Dreiecksgitters ein nichtmagnetischer Isolator. Der Metall-Isolator-Übergang hängt maßgeblich von der Anisotropie ab, genauso wie die Art der magnetischen Ordnung und das Erscheinen und die Ausdehnung der nichtmagnetischen Isolatorphase [1].

Spin-Bahn Kopplung ist der ausschlaggebende Parameter, der elektronische Bandmodelle in topologische Isolatoren wandelt. Spin-Bahn Kopplung im Allgemeinen beinhaltet auch den Rashba Term, der die SU(2) Symmetrie vollständig bricht. Sobald man auch Wechselwirkungen berücksichtigt, müssen sich viele theoretische Methoden auf die Analyse vereinfachter Modelle beschränken, die nur Spin-Bahn Kopplungen enthalten, welche die U(1) Symmetrie erhalten und damit eine Rashba Kopplung ausschließen. Wir versuchen diese bisher bestehende Lücke zu schließen und untersuchen das Kane-Mele Hubbard (KMH) Modell mit Rashba Spin-Bahn Kopplung und präsentieren eine systematische Analyse des Effekts der Rashba Spin-Bahn Kopplung in einem korrelierten zweidimensionalen topologischen Isolator. Wir wenden die VCA auf dieses Problem an und bestimmen das Phasendiagramm mit Wechselwirkung durch die Berechnung der lokalen Zustandsdichte, der Magnetisierung, der Einteilchenspektralfunktion und der Randzustände. Nach einer ausführlichen Auswertung des KMH-Modells, bei erhaltener U(1) Symmetrie, finden wir auch für endliche Wechselwirkung, dass eine zusätzliche Rashba Kopplung zu neuen elektronischen Phasen führt, wie eine metallische Phase und eine topologische Isolatorphase ohne Bandlücke in der lokalen Zustandsdichte, die aber eine direkte Bandlücke für jeden Wellenvektor besitzt [2].

Für eine Klasse von 5d Übergangsmetallen untersuchen wir ein KMH ähnliches Modell mit multidirektionaler Spin-Bahn Kopplung, das wegen seiner Relevanz für die Natrium-Iridate (engl. *sodium iridate*) als SI Modell bezeichnet wird. Diese intrinsische Kopplung bricht die SU(2) Symmetrie bereits vollständig und dennoch erhält man wegen der speziellen Form für starke Wechselwirkung wieder einen rotationssymmetrischen Néel-AFM Isolator. Der topologische Isolator des SIH-Modells ist adiabatisch mit dem des KMH-Modells verbunden, jedoch sind die Randströme hier nicht mehr spinpolarisiert.

Wir verallgemeinern das Konzept der Klein-Transformation, das bereits erfolgreich auf Spin-Hamiltonians angewandt wurde, und wenden es auf ein Hubbard-Modell mit rein imaginären spinabhängigen Hüpfen an, das im Grenzfall unendlicher Wechselwirkung in das Kitaev-Heisenberg Modell übergeht. Dadurch erhält man ein Modell des Dreiecksgitters mit reellen spinunabhängigen Hüpfen, das aber eine mehratomige Einheitszelle besitzt. Für schwache Wechselwirkung ist das System ein Dirac Halbmetall und für starke Wechselwirkung erhält man eine 120°-Néel antiferromagnetische Ordnung. Für mittlere Wechselwirkung findet man aber einen relativ großen Bereich in dem eine nichtmagnetische Isolatorphase stabil ist. Unsere Ergebnisse deuten auf die mögliche Existenz einer Quanten Spinflüssigkeit hin.

Die Ergebnisse meiner Dissertation wurden in folgenden Arbeiten bereits veröffentlicht [1–4]

Abstract

We investigate the anisotropic triangular Hubbard model as a suggested effective description of the Mott phase in various triangular organic compounds. Employing the variational cluster approximation (VCA) to treat the zero temperature phasediagram as a function of anisotropy and interaction strength. The metal-insulator transition substantially depends on the anisotropy, so does the nature of magnetism and the emergence of a non-magnetic insulating phase establishing a spin liquid candidate regime. For weak interactions we find a metal for all anisotropies. Depending on the strength of anisotropy we find a Néel- or a 120°-Néel-AFM order in the limit of square and triangular lattice. The non-magnetic insulating phase is located around the isotropic triangular lattice for intermediate interaction strength and is bounded by the metallic phase to weaker interactions, the Néel-AFM insulator for less anisotropy and the 120°-Néel-AFM insulator for stronger interaction strength [1].

Spin-orbit (SO) coupling is the crucial parameter to drive topological insulating phases in electronic band models. In particular, the generic emergence of SO coupling involves the Rashba term which fully breaks the SU(2) spin symmetry. As soon as interactions are taken into account, however, many theoretical studies have to content themselves with the analysis of a simplified U(1) conserving SO term without Rashba coupling. We intend to fill this gap by studying the Kane-Mele-Hubbard (KMH) model in the presence of Rashba SO coupling and present the first systematic analysis of the effect of Rashba SO coupling in a correlated two-dimensional topological insulator. We apply the VCAto determine the interacting phase diagram by computing local density of states, magnetization, single particle spectral function, and edge states. Preceded by a detailed VCAanalysis of the KMH model in the presence of U(1) conserving SO coupling, we find that the additional Rashba SO coupling drives new electronic phases such as a metallic regime and a direct-gap only topological insulating phase which persist in the presence of interactions [2].
In 5d transition-metal oxides, both the spin-orbit interaction and the electron correlation emerge at comparable orders of magnitude. In these systems, a variety of specifically tailored crystal structures are available, enabling the

design of robust topological insulators. We study theoretically a monolayer of the 5d-compound Na_2IrO_3, modeled by a Hubbard-type of Hamiltonian on a honeycomb lattice where the spin symmetry is not conserved. Based on a VCAcalculation, the zero temperature phase diagram is obtained.

We generalize the concept of Klein-dualities, successfully applied to spin Hamiltonians in the past, for tight-binding models and, as such, for Hubbard models. Specifically, we consider an imaginary spin-dependent hopping problem supplemented with an on-site Coulomb interaction which corresponds in the strong coupling limit to the Kitaev-Heisenberg model on the triangular lattice. After applying the Klein-transformation, we obtain a real and spin-independent model which we study in detail using the VCA. For weak interactions, the system is a Dirac semi-metal; for strong interactions, it acquires magnetic order being of 120°-Néel type. For intermediate interactions, there is a large non-magnetic insulator phase. Our results point towards the possibility of a quantum spin liquid phase.

Most results shown in this work are already published in references [1–4]

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **1**
- 1.1 Hubbard-Modell . . . 1
- 1.2 Frustration . . . 2
- 1.3 Spinflüssigkeit . . . 4
- 1.4 Topologische Isolatoren . . . 6

2 Methode **9**
- 2.1 Cluster Störungstheorie . . . 10
- 2.2 Selbstenergie-Funktional Theorie . . . 13
- 2.3 Variationelle Cluster Näherung . . . 20
  - 2.3.1 Berechnung der Clustergrößen . . . 22
  - 2.3.2 Band-Lanczos Methode . . . 23
  - 2.3.3 Greensche Funktion in der VCA . . . 26
  - 2.3.4 Großkanonisches Potential . . . 28
  - 2.3.5 Spektralfunktion . . . 30
  - 2.3.6 Observablen . . . 32
- 2.4 Einfluss der Variationsparameter auf die Qualität der Lösung 32
  - 2.4.1 Das chemische Potential . . . 32
  - 2.4.2 Symmetriebrechende Weissfelder . . . 33
  - 2.4.3 Nichtkorrelierte Badplätze . . . 35
  - 2.4.4 Die Variation der Hüpfparameter . . . 36

3 Frustration und Korrelation im Dreiecksgitter **41**
- 3.1 Externes Magnetfeld im frustrierten Quanten-Magneten . . . 42
  - 3.1.1 Magnetisierungsplateau . . . 44
  - 3.1.2 Magnetische Suszeptibilität im Magnetfeld . . . 45
- 3.2 Räumliche Anisotropie und starke Korrelation . . . 46
  - 3.2.1 Übergang vom Quadratgitter zum Dreiecksgitter . . . 48
  - 3.2.2 Spinflüssigkeit im frustrierten Gitter . . . 53
  - 3.2.3 Optimierung durch Variation der Hüpfamplitude . . . 56

4 Wechselwirkende Topologische Isolatoren **59**
4.1 Honigwaben Hubbard-Modell 61
4.1.1 wechselwirkungsfreie Bandstruktur 62
4.1.2 Schwache Wechselwirkung: Halbmetall 63
4.1.3 Starke Wechselwirkung: magnetische Ordnung 66
4.1.4 Clusterabhängigkeit und effektives Phasendiagramm . 67
4.2 Kane-Mele-Hubbard-Modell 68
4.2.1 wechselwirkungsfreie Bandstruktur 70
4.2.2 Schwache Wechselwirkung: topologischer Band-Isolator 71
4.2.3 Starke Wechselwirkung: XY Antiferromagnet 76
4.2.4 Cluster-Effekte 78
4.2.5 Phasendiagramm des Kane-Mele-Hubbard-Modells . . 79
4.3 Rashba-Spin-Bahn-Kopplung im Kane-Mele-Hubbard-Modell 80
4.3.1 wechselwirkungsfreie Bandstruktur 81
4.3.2 Schwache bis leichte Wechselwirkungsstärke 84
4.3.3 Starke Wechselwirkung: magnetische Ordnung 88
4.3.4 Clusterabhängigkeit der Ergebnisse 92
4.3.5 Vollständiges Phasendiagramm 93
4.4 Multi-direktionale Spin-Bahn-Kopplung: Na_2IrO_3 96
4.4.1 Wechselwirkungsfreie Bandstruktur 98
4.4.2 Schwache Wechselwirkung: Quanten Spin-Hall Phase . 99
4.4.3 Starke Wechselwirkung: antiferromagnetische Ordnung 100
4.4.4 Phasendiagramm 106

5 Topologie und Frustration im Dreiecksgitter **108**
5.1 Kitaev-Hubbard-Modell 109
5.2 Bestimmung der Phasenübergänge 114
5.3 Zusammenhang mit den Iridaten 118

6 Fazit **121**

Literatur **127**

Kapitel 1

Einleitung

Auf den ersten Blick scheint in der Natur meist das Chaos und die Unordnung zu herrschen, und dennoch steckt auf den zweiten Blick nahezu überall eine sehr genaue Struktur und Ordnung dahinter. Sieht man sich z.B. einen Bienenstock an, so schwirren ca. 50000 Bienen scheinbar chaotisch durcheinander, aber das Werk dieser Bienen bildet eine klare, geordnete und regelmäßige Honigwabenstruktur. Um Dreiecke in der Natur zu finden muss man etwas genauer hinsehen. Die Schneckenart *Cymbiola innexa* trägt z.B. auf ihrem Gehäuse ein Sierpinski-Dreieck. Sieht man tiefer in die Anordnungen kristalliner Strukturen, findet man häufig Dreiecks-, Quadrat-, oder Honigwabengitter.

1.1 Hubbard-Modell

Eines der einfachsten theoretischen Modelle zur Beschreibung kondensierter Materie mit endlicher Wechselwirkung ist das Hubbardmodell. Es besteht zunächst aus dem Anteil der kinetischen Energie, die als Hüpfen von einem Gitterplatz zum nächsten beschrieben wird und zum Anderen aus der lokalen Coulombenergie U, die es kostet, wenn zwei Elektronen mit verschiedenen Spins auf dem gleichen Gitterplatz sitzen. Eine doppelt Besetzung mit identischem Spin ist nach dem Pauliprinzip verboten.
Der Hubbard-Hamiltonian hat folgende Form,

$$\mathscr{H}_{Hubbard} = -\sum_{\langle i,j\rangle} t_{ij}\mathbf{c}_i^\dagger \mathbf{c}_j + \sum_i U_i \mathbf{n}_{i\uparrow}\mathbf{n}_{i\downarrow} + \sum_{i,\sigma} \mu_i \mathbf{n}_{i,\sigma}\,. \tag{1.1}$$

Eine schematische Darstellung des Models findet sich in Abbildung 1.1 Wie man sieht ist es möglich, dass Elektronen ein virtuelles Hüpfen zu einem Nachbarplatz und wieder zurück ausführen, wenn dies vom Pauliprinzip zulässig ist. Dabei wird die Energie des Systems für jedes Hüpfen um t abgesenkt, jedoch kostet es die Energie U wenn auf dem Nachbarplatz ein

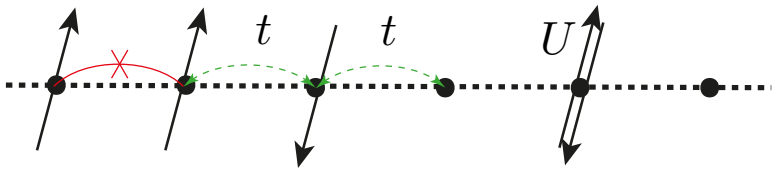


Abbildung 1.1: Das Hubbard-Modell: Elektronen können von einem Platz zum nächsten hüpfen, mit der Hüpfamplitude t. Wenn zwei Elektronen mit verschiedenem Spin auf dem gleichen Platz sitzen wirkt die lokale Coulombabstoßung mit Hubbard-U.

Elektron mit umgekehrtem Spin sitzt. Dieses virtuelle Hüpfen wird auch Fluktuation genannt und senkt effektiv die Energie des Systems ab.

1.2 Frustration

Ein sehr wichtiger Aspekt dieser Arbeit ist der Einfluss von Frustration auf die Eigenschaften verschiedener elektronischer Systeme. Frustration wurde ursprünglich als die Veränderung der kritischen Temperatur einer quantenmechanischen Rechnung im Vergleich zu einer klassischen Rechnung, definiert. Die Differenz der kritischen Temperatur aus klassischer und quantenmechanischer Rechnung kann als Frustration des Systems durch die quantenmechanischen Fluktuationen verstanden werden [5]. Diese Art der Frustration findet in allen quantenmechanischen System statt, also auch auf bipartiden Gittern. Das Dreiecksgitter birgt im Vergleich zu anderen zweidimiensionalen Gittern, wie dem Quadrat- oder dem Honigwabengitter eine Besonderheit, die geometrische Frustration. In manchen Gittern, z.B. in der eindimensionalen Kette oder auf dem Quadratgitter, können sich die Elektronen antiferromagnetisch anordnen. Dies führt zu einer Erniedrigung der Energie um t^2, da ein virtuelles Hüpfen zum Nachbarplatz möglich ist, selbst wenn es die Energie U kostet, wenn zwei Elektronen auf dem selben Gitterplatz sitzen. Dieses virtuelle Hüpfen ist nach dem Pauliprinzip für zwei benachbarte Elektronen des selben Spins natürlich verboten. Auf dem Dreiecksgitter kann sich nun, wie In Abbildung 1.2 gezeigt, keine antiferromagnetische Ordnung ausbilden. Wenn man auf zwei benachbarten Gitterplätzen zwei Elektronen mit verschiedenen Spins hat, so hat ein drittes Elektron, egal mit welchem Spin, immer eine frustrierte Verbindung. Des Weiteren hat das Dreiecksgitter eine erhöhte Koordinationszahl $Z = 6$, im Vergleich zum Quadratgitter $Z = 4$, was zu einer erhöhten Dynamik der Fluktuationen führt. Zusammengenommen führt dies für das Dreiecksgitter zu einem reichhaltigen Phasendiagramm und gibt möglicherweise Raum für exotische Phasen, wie z.B. Spinflüssigkeit oder unkonventioneller topologischer Supraleiter, um nur wenige Beispiele zu nennen. Die Stärke der quantenmechanischen Fluktuationen ist abhängig von der Koordinationszahl, der Anzahl der nächsten Nachbarn, jedoch lässt sich nicht allgemein sagen, dass eine höhere Koordi-

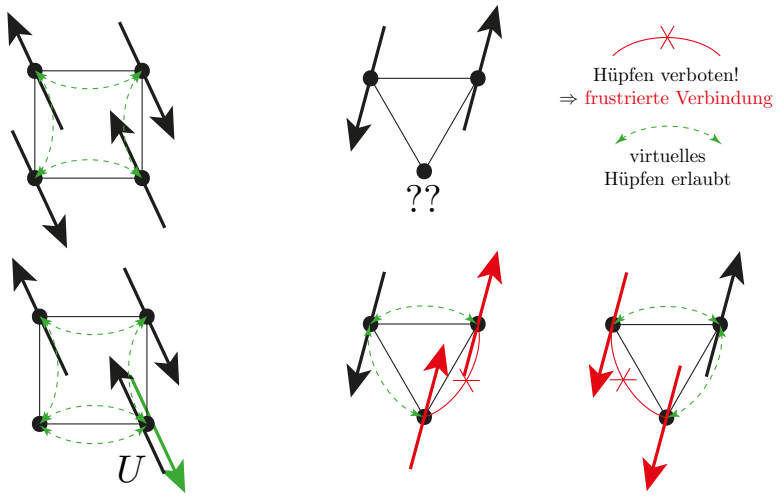


Abbildung 1.2: Links ist die Darstellung des Quadratgitters mit antiferromagnetischer Ordnung dargestellt. Auf der rechten Seite soll die Problematik von geometrischer Frustration anhand von zwei möglichen Basiszuständen veranschaulicht werden. Sitzen z.B. auf dem Dreiecksgitter zwei benachbarte Elektronen mit entgegengesetztem Spin, so ist unklar welchen Spin ein Elektron auf dem dritten Platz einnehmen soll. Egal ob der dritte Platz mit einem Elektron mit ↑- oder ↓-Spin besetzt wird, eine Verbindung ist immer Frustriert während die andere ein virtuelles Hüpfen erlaubt.

nationszahl zu stärkerer Fluktuation führt. Dazu vergleichen wir z.B. die Koordinationszahl zweier nichtfrustrierter bipartider Gitter. Das Quadratgitter (Abbildung 1.3 links) mit der Koordinationszahl $Z = 4$ und das Honigwabengitter (Abbildung 1.4) mit $Z = 3$, zeigen beide ähnliches magnetisches Verhalten für starke Wechselwirkung. Dennoch findet man eine Verstärkung der Fluktuationen des Honigwabengitters im Vergleich zum Quadratgitter. Beide Gitter führen zu einer antiferromagnetischen Néel-Ordnung. Die Berücksichtigung der quantenmechanischen Fluktuationen, z.B. in einer Spinwellenrechnung [6], führt zu einer Verringerung der Untergittermagnetisierung, die für das Honigwabengitter über 50% beträgt und deutlich höher ist als für das Quadratgitter. Vergleicht man andererseits das Quadratgitter mit dem Kagomegitter (Abbildung 1.4 rechts), so findet man in beiden Gittern die gleiche Koordinationszahl $Z = 4$, das heißt man findet Fluktuationen zumindest in der gleichen Größenordnung. Diese beiden Gitter unterscheiden sich aber fundamental, während das Quadratgitter bipartid ist und damit alle Verbindungen befriedigt sind, ist das Kagomegitter das mit am stärksten frustrierte Gitter.

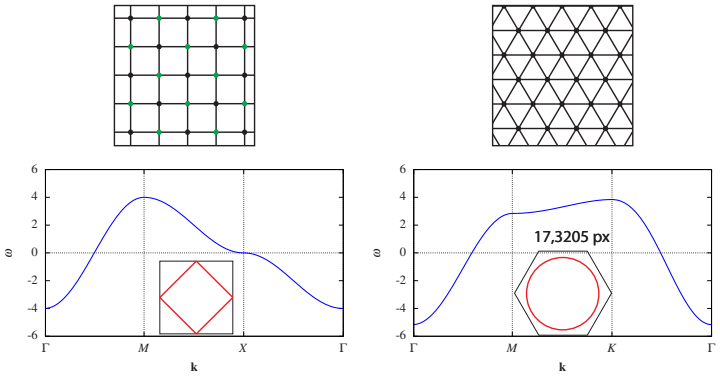


Abbildung 1.3: Gitter und Bandstruktur des Quadratgitters (links) und des Dreiecksgitters (rechts) und eingefügt die jeweilige Brillouinzone mit der Fermifläche bei Halbfüllung.

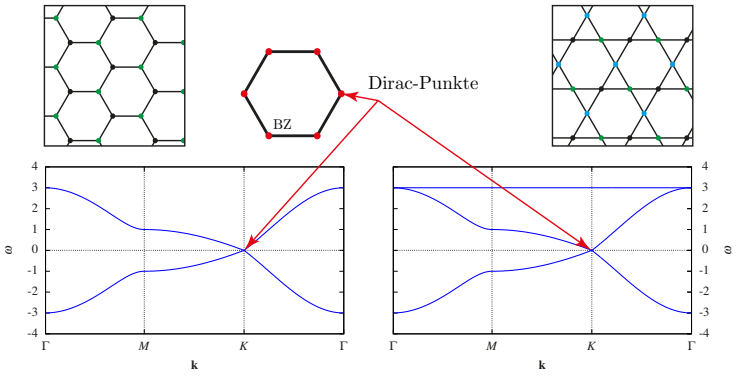


Abbildung 1.4: Bandstruktur des Honigwabengitters (links) und des Kagomegitters (rechts). Beide Gitter sind hexagonale Gitter, und besitzen folglich eine hexagonale Brillouinzone, haben aber Einheitszellen aus zwei bzw. drei Atomen. In der Brillouinzone (oben Mitte) sind auch noch die Positionen der Dirac-Punkte markiert.

1.3 Spinflüssigkeit

Die Frustration, z.B. im Dreiecks- oder im Kagomegitter, kann zu einer Entartung des Grundzustandes führen. Diese Entartung wurde in Abbildung 1.5 schematisch für Isingspins in einem Dreieck gezeigt, das Teil des Dreiecks- oder des Kagomegitters sein kann. In zwei und drei Dimensionen können solche Entartungen überleben, was dazu führt, dass Fluktuationen verstärkt werden und eine mögliche Ordnung unterdrückt wird. Durch die Fluktuationen ist es möglich, dass das System aus einem Grundzustand in den anderen übergeht, quasi zwischen den verschiedenen Zuständen fließt, deshalb nennt man diese neuartige Phase Spinflüssigkeit. Ramirez [7] hat eine einfache empirische Methode eingeführt, mit der sich der Grad der Frustration messen lässt. Dazu vergleicht man die Temperatur T_N, bei der magnetische langreichweitige Ordnung auftritt, mit der Curie-Weiss Temperatur θ_{CW}. Die

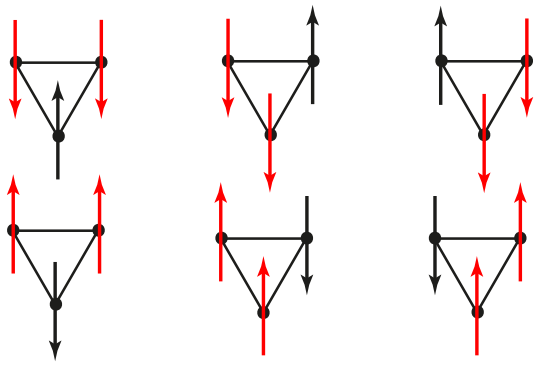


Abbildung 1.5: Ein Dreieck antiferromagnetisch wechselwirkender Isingspins. Da nicht alle drei Spins antiparallel ausgerichtet werden erhält man eine höhere (hier sechsfache) Entartung als die generell für das Ising Modell erwartete doppelte Entartung zwischen ↑ und ↓ (obere und untere Reihe).

Curie-Weiss Temperatur ist die Temperatur, unterhalb derer spontane Magnetisierung eines Materials auftritt und oberhalb derer ohne ein angelegtes externes Feld keine magnetische Ordnung besteht. Man erhält sie aus dem Hochtemperaturverhalten der Suszeptibilität $\chi = C/(T - \theta_{CW})$ und gibt die Temperatur an, bei der die Suszeptibilität divergiert. Mit diesen beiden Temperaturen lässt sich ein Frustrationsparameter definieren $f = \frac{\theta_{CW}}{T_N}$. Eine Spinflüssigkeit entsteht also aus der Entartung die durch die Frustration bedingt ist und existiert nur bei endlicher Wechselwirkungsstärke [8]. Ein direkter experimenteller Nachweis einer Spinflüssigkeit ist nicht möglich, da diese keine Ordnung trägt. Deshalb kann man einen Nachweis nur durch Ausschluss aller möglichen Ordnungen führen. Die theoretische Möglichkeit von Quanten-Spinflüssigkeiten wurde seit Andersons Vorschlag von 1973 [9] heiß diskutiert. In den letzten Jahren hat man in einigen wenige Verbindungen Hinweise auf eine Spinflüssigkeit gefunden, also vor allem keine magnetische Ordnung bis zu sehr niedrigen Temperaturen. In einigen stark korrelierten organischen Ladungstransfersalzen wurde keine Signatur einer magnetischen Ordnung gefunden [10–13]. Bei den organischen Ladungstransfersalzen gibt es eine ganze Klasse von Verbindungen, die einige Gemeinsamkeiten haben, wie ihr Fermiflüssigkeitsverhalten und der Mottübergang [14, 15]. Diese Verbindungen bilden alle ein anisotropes Dreiecksgitter und unterscheiden sich in der Stärke der Anisotropie, die wiederum die Stärke der Frustration bestimmt [16, 17]. Hier zeigt sich also der Einfluss der Frustration auf eine mögliche Spinflüssigkeitsphase. Die Spinflüssigkeitsphase kann auch als anomale topologische Phase bezeichnet werden, die in Konkurrenz steht zu anderen trivialen Phasen, wie antiferromagnetischer Isolatoren, Dimerordnung oder *valenz-bond*-Kristallen. Diese anderen Phasen können oft durch Methoden nachgewiesen werden, bei denen das System auf eine kleine Störung reagiert und dadurch eine Ordnung zeigt (engl. *linear-response*), die als Ordnungspa-

rameter gemessen werden kann. Eine weitere Möglichkeit liegt direkt in der Messung von zweiteilchen Anregungen, z.B. die Suszeptibilität des Systems, was eine sehr viel allgemeinere Aussage liefert.

1.4 Topologische Isolatoren

Im Gegensatz zur Spinflüssigkeitsphase kann ein topologischer Isolator bereits aus der wechselwirkungsfreien topologischen Bandstruktur entstehen. Man findet im topologischen Isolator, genau wie bei einem normalen, eine Bandlücke im Probeninneren, aber im Gegensatz zum topologisch trivialen Isolator, besitzt der topologische Isolator helikale leitende Randströme. Diese Phase wird in zwei Dimensionen auch Quanten-Spin-Hall (QSH) Phase genannt und ist das Analogon zum integralen Quanten-Hall-Effekt (QHE). Während beim QHE ein Ladungsstrom $\vec{j}$ senkrecht zum elektrischen Feld $\vec{E}$ und dem angelegten Magnetfeld entsteht, der die Hall-Leitfähigkeit definiert $\vec{j} = \sigma_{xy}\vec{E}$, erhält man im QSH-Effekt bereits ohne Magnetfeld einen Spinstrom $\vec{j}_S$, der die Spin-Hall-Leitfähigkeit definiert $\vec{j}_S = \sigma_{SH}\vec{E}$.

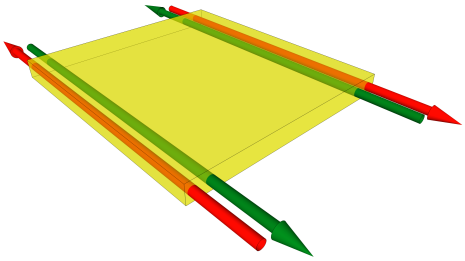


Abbildung 1.6: Helikale Randzustände im QSH Zustand. Die grünen Pfeile stehen für den Kanal der ↑-Elektronen und die roten Pfeile für den Kanal der ↓-Elektronen, die sich entgegengesetzt bewegen. Auf gegenüberliegenden Seiten der Probe laufen die Kanäle entsprechend in der entgegengesetzten Richtung.

Kane und Mele haben in ihren Arbeiten versucht Graphen zu beschreiben und dazu eine Spin-Bahn-Kopplung im Honigwabengitter eingeführt, die zu einer topologischen Isolatorphase führt [18, 19]. Auch wenn später gefunden wurde, dass die Bandlücke durch die Spin-Bahn-Kopplung in Graphen unmessbar klein ist [20,21], haben Kane und Mele damit das Gebiet der topologischen Isolatoren begründet. Kurze Zeit später konnte man in Quecksilber-Tellurid Quantentöpfen die quantisierte Spin-Hall-Leitfähigkeit [22] und den dissipationslosen Transport von Ladung und Spins in den Randströmen nachweisen [23]. Da die topologische Bandlücke direkt von der Stärke der Spin-Bahn Kopplung abhängt, sucht man nach Materialien, die aus schwereren Elementen (d.h. höhere Kernladungszahl Z) bestehen, da die Spin-Bahn-Kopplung proportional zu $V_{ISO} \propto Z^4$ ist. Ein Beispiel stellen die Iridate dar [24, 25].

Das von Kane und Mele vorgestellte Modell setzt sich aus zwei Haldane Modellen zusammen, je eins für jeden Spin. Während das Haldane Modell die Zeitumkehrsymmetrie bricht, erhält das Kane-Mele-Hubbard (KMH) Modell die Zeitumkehrsymmetrie. Wir betrachten hier also zeitumkehr-invariante topologische Isolatoren. Im QSH-Zustand existieren immer zwei gegenläufige metallische Kanäle am Rand der Probe, die topologisch geschützt sind. Das bedeutet, dass in den Kanälen dissipationsfrei Ladung und Spin transportiert werden kann.
In einem zeitumkehrsymmetrischen System ist der Zustand $\psi(k)$ der Kramers Partner von $\psi(-k)$. Mit Hilfe des Zeitumkehroperators T lässt sich ein Zustand durch den anderen ausdrücken:

$$T\psi(k) = \psi(-k) \tag{1.2}$$

Da der Zeitumkehroperator mit dem Hamiltonian vertauscht $[T, H] = 0$, muss $T\psi(k)$ immer ein Eigenzustand von H mit Energie ϵ sein, wenn $\psi(k)$ ein Eigenzustand von H mit Energie ϵ ist:

$$\begin{aligned} H\,|\psi(k)\rangle &= \epsilon\,|\psi(k)\rangle \\ HT\,|\psi(k)\rangle = TH\,|\psi(k)\rangle &= T\epsilon\,|\psi(k)\rangle = \epsilon T\,|\psi(k)\rangle \end{aligned} \tag{1.3}$$

Für jeden beliebigen Zeitumkehrinvarianten Hamiltonian $\tilde{H}$ gilt:

$$\langle\psi(k)|\tilde{H}|T\psi(k)\rangle = 0, \tag{1.4}$$

wenn der Zustand $\psi(k)$ genau mit einer ungeraden Anzahl an Fermionen besetzt ist. $\langle\psi(k)|\tilde{H}|T\psi(k)\rangle$ ist genau die Streuamplitude vom Zustand $\psi(k)$ in den Zustand $T\psi(k) = \psi(-k)$ unter dem Hamiltonian $\tilde{H}$. Für die helikalen Randzustände des topologischen Isolators bedeutet das, dass Rückstreuung aus einem Kanal in den entgegenlaufenden wegen der Zeitumkehrsymmetrie verboten ist. Die helikalen Randzustände sind also durch die Zeitumkehrsymmetrie topologisch geschützt. Im Kane-Mele-Modell findet man, aufgrund der erhaltenen U(1) Rotationssymmetrie um die z-Achse, zwei perfekt spinpolarisierte entgegenlaufende Kanäle am Rand einer Probe, wie es meistens für den QSH-Zustand und auch in Abbildung 1.6 dargestellt ist. Der topologische Schutz vor Rückstreuung ist aber, wie eben gezeigt, nicht von der Polarisation der Kanäle abhängig, sondern wird direkt auf die Zeitumkehrsymmetrie zurückgeführt.

Kapitel 2

Methode

In diesem Kapitel wird die Methode dieser Arbeit vorgestellt: die variationelle Cluster Näherung (engl. *variational cluster approximation* VCA [26]) die sich historisch aus der Cluster Störungstheorie (engl. *cluster perturbation theory* CPT [27]) entwickelt hat, weshalb auch diese kurz vorgestellt wird. Mit der CPT lässt sich die Spektralfunktion eines System ohne langreichweitige Ordnung darstellen und besitzt nur für starke Wechselwirkungsstärke Gültigkeit. Begründet wird die variationelle Cluster Näherung aber mit der Selbstenergie Funktional Theorie (engl. *selfenergy functional theory* SFT [28, 29]), die einen anderen Zugang zur physikalischen Lösung des Problems bietet. Die SFT ist die Grundlage vieler aktueller numerischer Methoden, wie z.B. *dynamical impurity approach* (DIA), die *dynamical mean field theory* (DMFT) sowie deren Cluster Erweiterungen [30] und eben auch der variationellen Cluster Näherung. Die VCA wurde als Methode für starkwechselwirkende Systeme entwickelt, besitzt aber auch im schwach wechselwirkenden Gültigkeit, wodurch das Phasendiagramm im gesamten Bereich der Wechselwirkung berechnet werden kann, vom wechselwirkungsfreien $U = 0$ Fall bis zum starkwechselwirkenden Grenzfall $U \to \infty$, der in Heisenbergähnliche Modelle übergeht und das System mit einem Spinhamiltonian beschrieben werden kann. Zunächst gehe ich kurz auf die Cluster Störungstheorie ein. Dann wird die Selbstenergie Funktional Theorie eingeführt wird und gezeigt wie das großkanonische Potential $\Omega[\Sigma]$ als Funktional der Selbstenergie dargestellt wird. Bei der Einführung der VCA wird ausführlich dargestellt, wie die einzelnen Größen berechnet werden, wie das großkanonische Potenzial, der Spektralfunktion oder verschiedene Erwartungswerte, z.B. in der (π, π) antiferromagnetischen Ordnung oder der 120°-Néel-Ordnung. Ich habe zu dieser Arbeit die variationelle Cluster Näherung auf das Problem des Dreiecksgitters und einigen Variationen des Honigwabengitters angewandt, deren relevanter Bereich für realistische Materiale nicht immer bei starker Wechselwirkungen liegt. Deshalb musste die VCA weiterentwickelt und für schwache Wechselwirkung optimiert werden. Die Stärke der variationellen Cluster

Näherung liegt zum Einen darin, dass der gesamte Bereich für Wechselwirkungen untersucht werden kann. Außerdem können in der VCA auch symmetriegebrochene Phasen langreichweitiger Ordnung beschrieben werden.

2.1 Cluster Störungstheorie

Die Cluster Störungstheorie (engl. *cluster perturbation theory* CPT [27]), bietet die einfache Möglichkeit der Berechnung der Spektralfunktion $A(\mathbf{k}, \omega)$, die die Verteilung der Energie $\hbar\omega$ angibt wenn ein Elektron mit dem Wellenvektor $\mathbf{k}$ zu einem System hinzugefügt oder daraus entfernt wird. Die Spektralfunktion kann auch experimentell sehr genau gemessen werden z.B. mit der Winkelauflösenden Photoelektronenspektroskopie (engl. *angle-resolved photoemission spectroscopy* ARPES [31]) und ist damit ein sehr gutes Werkzeug um zentrale Fragestellungen der Festkörperphysik, z.B. die (nicht) Existenz eines wohldefinierten Quasiteilchens, zu behandeln. Auf der theoretischen Seite erhält man die Spektralfunktion aus dem Imaginärteil der Einteilchen Greenschen Funktion:

$$A(\mathbf{k}, \omega) = \lim_{\eta \to 0^+} -\frac{1}{\pi} \Im G\left(\mathbf{k}, \omega + i\eta\right) . \tag{2.1}$$

Die hier vorgestellte Methode der CPT basiert auf einer Kombination aus exakter Diagonalisierung (ED) endlich großer Cluster und Störungstheorie in stark korrelierten Systemen [32, 33]. Für die ED der Systeme bei $T = 0$ kommt meist der Lanczos-Algorithmus [34] zur Anwendung, der hier in Form des Band-Lanczos [35, 36] angewandt wird. Die Anforderungen an den Arbeitsspeicher der Computer wachsen bei diesem Problem leider exponentiell mit der Größe der Cluster, wodurch die Clustergröße auf relativ wenige Gitterplätze beschränkt ist, z.B. für das halbgefüllte Hubbard-Modell, für Fermionen mit Spin $S = \frac{1}{2}$, maximal $N_c \leq 16$.
Wir gehen in drei Schritten vor.(i) Zunächst wird das Gitter in identische N_c-Platz Cluster aufgeteilt, sodass alle Gitterplätze ausgefüllt sind. (ii) Dann wird die Einteilchen Greensche Funktion $G_{a,b}(i\omega)$ innerhalb des Cluster mit offenen Randbedingungen berechnet (wobei a, b Gitterplatzindize eines Clusters sind und z eine komplexe Frequenz ist). (iii) Zuletzt wird das Hüpfen zwischen den Clustern t_0 störungstheoretisch behandelt und die Translationsinvarianz der Greenschen Funktion $G(\mathbf{k}, \omega)$ wiederhergestellt. Demnach werden kurzreichweitige Effekte exakt behandelt während die langreichweitigen Effekte lediglich auf einem Level behandelt werden, das dem Einteilchen Analogon der RPA entspricht.
Der erste Schritt (i), das Aufteilen des unendlichen Gitters in identische Cluster ist in Abbildung 2.1 illustriert und muss derart geschehen, dass durch einfaches Verschieben der Cluster das Originalgitter wieder vollständig ausgefüllt ist, ohne sich zu überschneiden. Über das Originalgitter wird, mit dem Cluster als Einheitszelle, ein Supergitter gelegt. Die Einteilung kann beliebig

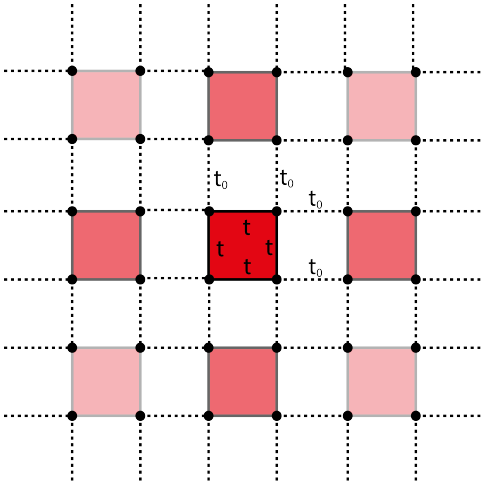


Abbildung 2.1: Das Gitter wird in identische Cluster unterteilt, in dieser schematischen Darstellung mit je vier Plätzen, die das Gitter vollständig ausfüllen müssen. Innerhalb des Clusters sind die Gitterplätze mit der Hüpfamplitude t verbunden während die Amplitude zwischen den Clustern t_0 ist.

vorgenommen werden, solange die eben genannten Bedingungen erfüllt sind. Die Cluster können unterschiedliche Größen und Formen besitzen. Je größer sie sind, umso genauer ist die Lösung und geht im Grenzfall des unendlichen Clusters in die exakte Lösung des Problems über. Die Form des Clusters ist ausschlaggebend, so werden z.B. in einem gestreckten Cluster die Korrelationen in den unterschiedlichen Richtungen jeweils anders berücksichtigt.
Im zweiten Schritt (ii) wird die Cluster Greensche Funktion berechnet

$$G_{a,b}(i\omega) = \left\langle \psi_0 \left| c_a \frac{1}{z-H} c_b^\dagger \right| \psi_0 \right\rangle + \left\langle \psi_0 \left| c_b^\dagger \frac{1}{z+H} c_a \right| \psi_0 \right\rangle \qquad (2.2)$$

wobei hier $|\psi_0\rangle$ der Grundzustand des Systems ist, den wir durch ED des Systems auf dem Cluster erhalten, $c_a(c_b^\dagger)$ ist der Vernichter (Erzeuger) eines Elektrons auf dem Gitterplatz $a(b)$ und H der Hamiltonian des Clusters.
Der letzte Schritt (iii), die Wiederherstellung der Translationsinvarianz der Greenschen Funktion auf dem unendlichen Gitter, wird etwas detaillierter dargestellt. Das vollständige System wird behandelt als Supergitter bestehend aus Clustern, die wiederum aus N_c einfachen Gitterplätzen bestehen: wir erhalten den Vernichter für Elektronen mit $c_{\mathbf{R},a}$ der auf den Gitterplatz a im Cluster am Ort $\mathbf{R}$ wirkt ($a = 1, \cdots, N_c$). Der komplette Hamiltonian des Systems kann dann geschrieben werden als

$$H = H_C + T$$
$$H_C = \sum_{\mathbf{R}} [H_t^{(c)}(\mathbf{R}) + H_U(\mathbf{R})]$$

$$T = \sum_{\mathbf{R},\mathbf{R}'} H_{t_0}^{(i)}(\mathbf{R},\mathbf{R}') \tag{2.3}$$

Dabei kennzeichnet $\mathbf{R}$ den Ort, der unterschiedlichen Cluster, und $H_t^{(c)}(\mathbf{R})$ die Hüpfen innerhalb dieser Cluster. $H_U(\mathbf{R})$ ist der Wechselwirkungsterm, der nur innerhalb des Clusters wirkt. $H_{t_0}^{(i)}(\mathbf{R},\mathbf{R}')$ sind die Hüpfterme zwischen den Clustern

$$T = \sum_{\substack{\mathbf{R},\mathbf{R}' \\ a,b}} T_{a,b}^{\mathbf{R},\mathbf{R}'} c_{\mathbf{R},a}^{\dagger} c_{\mathbf{R}',b}\,, \tag{2.4}$$

wobei die Hüpfmatrix $T_{a,b}^{\mathbf{R},\mathbf{R}'}$ nur Einträge ungleich Null für Hüpfprozesse besitzt, die zwischen den beiden Clustern am Ort $\mathbf{R}$ und $\mathbf{R}'$ stattfinden, siehe Abbildung 2.1 Hüpfen mit der Amplitude t_0. a, b sind allgemeine Quantenzahlen auf dem Cluster, können z.B. für Spin und Ort stehen. Die Größe, die uns interessiert, ist die Einteilchen Greensche Funktion $G_{a,b}(\mathbf{Q},\omega)$, mit dem Supergitter Wellenvektor $\mathbf{Q}$, und den Gitterplatz Indizes innerhalb eines Clusters a, b. Die Hüpfmatrix T ist ein Einteilchenoperator und wird jetzt als Störung betrachtet und als solche behandelt, wie in dem Formalismus in den Referenzen [32, 33] im Detail beschrieben. Hier wurde systematisch eine Störungstheorie für Terme dieser Art konstruiert. In niedrigster Ordnung hat der Beitrag dieser Erweiterung eine RPA-ähnliche Form:

$$G_{a,b}(\mathbf{Q}, i\omega) = \left(\frac{\hat{G}(i\omega)}{1 - \hat{T}(\mathbf{Q})\hat{G}(i\omega)} \right)_{a,b}, \tag{2.5}$$

hierbei ist jetzt $\hat{G}(i\omega)$ die verallgemeinerte atomare Greensche Funktion, die jetzt eine $N_c \times N_c$ Matrix ist. Außerdem ist die Störung $\hat{T}(\mathbf{Q})$ die Hüpfmatrix zwischen den Clustern, in der Darstellung der reziproken Supergittervektoren aus Gleichung (2.4)

$$\hat{T}(\mathbf{Q})_{a,b} = \sum_{\mathbf{R},\mathbf{R}'} e^{iQ(\mathbf{R}-\mathbf{R}')} T_{a,b}^{\mathbf{R},\mathbf{R}'} \tag{2.6}$$

Die Relation in Gleichung (2.5) kann auch als eine auf Cluster verallgemeinerte Hubbard-I Näherung [37] aufgefasst werden und ist jetzt in einer gemischten Darstellung: innerhalb eines Clusters im Realraum und zwischen den Clustern im reziproken Fourierraum. Bevorzugt wäre aber eine reine Fourierdarstellung der Greenschen Funktion. Da die Aufteilung des Gitters in Cluster die Translationsinvarianz bricht, hängt G von zwei kontinuierlichen Impulsen k und k' ab, die identische Modulo bezüglich des reziproken Supergitters besitzen. Wenn wir jetzt $t = t_0$ setzen erhält man aus der Impulserhaltung für die Greensche Funktion in der Cluster Störungstheorie

$$G_{CPT}(\mathbf{k}, i\omega) = \frac{1}{N} \sum_{a,b} e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}_a - \mathbf{r} - b)} G_{a,b}(N\mathbf{k}, i\omega) \tag{2.7}$$

Aus den Gleichungen (2.5) und (2.7) kann jetzt einfach die Spektralfunktion berechnet werden. Die störungstheoretische Näherung die uns Gleichung (2.5) liefert, ist exakt im wechselwirkungsfreien Fall $U = 0$, und wir können Wicks Theorem anwenden. In diesem Fall ist $\hat{T}(\mathbf{Q})$ dann genau die exakte Selbstenergie des Systems. Da wir zusätzlich $t = t_0$ setzen erhalten wir aus Gleichung (2.7) die analytisch exakte Spektralfunktion, für den wechselwirkungsfreien Fall eines unendlich ausgedehnten Systems, aus der exakten Greenschen Funktion eines endlich großen Clusters mit offenen Randbedingungen. Für $U \neq 0$ wird die Spektralfunktion natürlich nicht mehr exakt. Um die CPT aber auch für endliche Wechselwirkungsstärken anzuwenden, wird wie folgt argumentiert. Für sehr starke Wechselwirkungen werden Korrelationen immer kurzreichweitiger, diese können dann in guter Genauigkeit innerhalb der Cluster ED berücksichtigt werden. Solange die Wechselwirkung nur Korrelationen verursacht, die kürzer sind als die Clustergröße, liefert die CPT brauchbare Ergebnisse. Die CPT ist in zwei Grenzfällen einsetzbar: $U = 0$, wo sie exakte Ergebnisse liefert, und im Falle sehr starker Wechselwirkung.
In der CPT wird zunächst die Greensche Funktion eines endlich ausgedehnten Clusters mit ED berechnet. Durch verschieben der Cluster Greenschen Funktion wird dann das gesamte Gitter mit isolierten Clustern ausgefüllt, die dann nach einem störungstheoretischen Ansatz verbunden werden. Damit erhält man für den Nichtwechselwirkenden Fall die exakte Bandstruktur $A(\mathbf{k}, \omega)$ mit beliebig feiner Diskretisierung im Fourierraum. Auch für endliche Wechselwirkungsstärken und besonders für sehr starke Korrelationen liefert die CPT in seiner Näherung gute Ergebnisse. Mit der CPT ist es allerdings nicht möglich symmetriegebrochene Phasen oder langreichweitige Ordnung zu detektieren.

2.2 Selbstenergie-Funktional Theorie

Die VCA ist, genau wie einige andere Methoden, z.B. *dynamical impurity approach* (DIA), die *dynamical mean field theory* (DMFT) sowie deren Cluster Erweiterungen [30], begründet in der Selbstenergie Funktional Näherung [28, 29] (engl. *selfenergy functional approximation* SFA).
Die SFA, die von Michael Potthoff entwickelt [28] wurde, beruht auf dem Variationsprinzip, das die elektronische Selbstenergie Σ als dynamische Variable nutzt. Dieses Funktional ist normalerweise nicht exakt bestimmbar, da es aus einer unendlichen Reihe von Skelett Diagrammen besteht. Bisher ging man folgendermaßen vor: das exakte aber unbekannte Funktional wird durch ein bekanntes aber genähertes ersetzt [38,39]. In der SFA wird ein dazu gegensätzlicher Weg eingeschlagen: die funktionale Abhängigkeit des großkanonischen Potentials wird in keiner Weise eingeschränkt oder genähert. Die Kernidee der SFA besteht darin, dass das Funktional exakt berechnet

werden kann, aber nur auf einem eingeschränkten Bereich von Testselbstenergien $\mathcal{S}$. Der Raum der Testselbstenergien muss repräsentativ für das Originalsystem sein, das heißt es muss die gleichen Wechselwirkung besitzen und in einem exakt lösbaren Referenzsystem sein. Das großkanonische Potential wird als Funktional $\Omega[\Sigma]$ konstruiert, von dem man zeigen kann, dass es an der physikalischen Selbstenergie einen stationären Punkt aufweist. Die SFA ist also konzeptionell anders als z.B. die Greensche Funktions- oder DF-Näherung, da keine Näherung am Funktional selbst vorgenommen wird, sondern dieses auf einem eingeschränkten Phasenraum berechnet wird. Die SFA ist allgemein und enthält nur nichtstörungstheoretische, thermodynamisch konsistente und systematische Näherungen.
Wir gehen von einem allgemeinen Hamiltonian aus:

$$H = H_0(\mathbf{t}) + H_1(\mathbf{U})\,, \tag{2.8}$$

mit den Einteilchenparametern $\mathbf{t}$, z.B. das Hüpfen, das chemische Potential, sowie die Weissfelder für langreichweitige magnetische Ordnung oder das supraleitende Paarungsfeld, und Zweiteilchen Wechselwirkungsparameter $\mathbf{U}$, z.B. die Coulombwechselwirkung in Form des Hubbard-U. Es interessieren uns die Gleichgewichtsthermodynamik und elementare Einteilchenanregungen des Systems bei einer Temperatur T und dem chemischen Potential μ, welche durch die Einteilchen-Greensche Funktion $G_{\alpha\beta}(i\omega) = \langle\langle c_\alpha; c^\dagger_\beta\rangle\rangle$ in imaginären fermionischen Matsubarafrequenzen $i\omega = i(2n+1)\pi T$ beschrieben wird. Die Greensche Funktion kann über die Dysongleichung (2.9) aus der Selbstenergie $\Sigma(i\omega)$ berechnet werden.

$$\mathbf{G}^{-1}(i\omega) = \mathbf{G}_0^{-1}(i\omega) - \Sigma(i\omega)\,. \tag{2.9}$$

Die Selbstenergie ist gegeben durch $\mathbf{\Sigma} = \mathbf{\Sigma}[\mathbf{G}] = T^{-1}\delta\Phi[\mathbf{G}]/\delta\mathbf{G}$, wobei $\Phi[\mathbf{G}]$ das sogenannte Luttinger-Ward-Funktional [38] ist. Jetzt lässt sich die Greensche Funktion über ein Variationsprinzip berechnen, wenn man $\delta\Omega[\mathbf{G}]/\delta\mathbf{G} = 0$ benutzt, mit $\Omega[\mathbf{G}] = \Phi[\mathbf{G}] + \mathrm{Tr}\ln(-\mathbf{G}) - \mathrm{Tr}\left(\mathbf{G}_0^{-1} - \mathbf{G}^{-1})\mathbf{G}\right)$ und der Notation $\mathrm{Tr}\mathbf{A} = T\sum_{\omega,\alpha} A_{\alpha\alpha}(i\omega)$. Im Allgemeinen ist das Funktional $\Phi[\mathbf{G}]$ nicht explizit bekannt, was eine Berechnung von $\Omega[\mathbf{G}]$ für ein gegebenes $\mathbf{G}$ unmöglich macht. In einer Näherung schwacher Kopplung, in der nur eine Unterklasse von Φ-Diagrammen aufsummiert wird, lässt sich näherungsweise $\Phi_{pert.[\mathbf{G}]} \approx \Phi[\mathbf{G}]$ explizit berechnen.
Die SFA basiert auf der Variation des Funktionals $\Omega = \Omega[\mathbf{\Sigma}]$, mit der Selbstenergie, die aus dem Inversen der Greenschen Funktion $\mathbf{G} = \mathbf{G}[\Sigma]$ definiert ist. Dann lässt sich das großkanonische Potential berechnen:

$$\Omega_t[\Sigma] \equiv \mathrm{Tr}\ln\left(-(\mathbf{G}_0^{-1} - \Sigma)^{-1}\right) + F[\Sigma] \tag{2.10}$$

mit $F[\Sigma] \equiv \Phi[G[\Sigma]] - \mathrm{Tr}(\Sigma\mathbf{G}[\Sigma])$ der Legendretransformation von $\Phi[\mathbf{G}]$. Der Index t gibt die explizite t-Abhängigkeit von Ω an, die aus der freien

Greenschen Funktion $\mathbf{G}_0$ kommt. Benutzt man $T^{-1}\delta F[\Sigma/\delta\Sigma] = \mathbf{G}[\Sigma]$, erhält man

$$\frac{\delta\Omega_t[\Sigma]}{\delta\Sigma} = 0 \Leftrightarrow \mathbf{G}[\Sigma] = (\mathbf{G}_0^{-1} - \Sigma)^{-1} \tag{2.11}$$

Daher ist $\Omega_t[\Sigma]$ bei der exakten Selbstenergie stationär, zumindest an einer physikalischen, und sein Wert ist das exakte großkanonische Potential des Systems. Hierbei ist allerdings im Allgemeinen das Funktional $\Omega_t[\Sigma]$ nicht explizit bekannt.
Als Definitionsbereich des Selbstenergiefunktionals definieren wir eine Klasse aller $\mathbf{t}'$ darstellbaren Selbstenergien. Σ kann als $\mathbf{t}'$ repräsentierbar bezeichnet werden, wenn es einen Satz an Hüpfparameter $\mathbf{t}'$ gibt, so dass Σ die exakte Selbstenergie des Modells $H' = H_0(\mathbf{t}') + H_1(\mathbf{U})$ ist. Das impliziert, dass jede Selbstenergie im Bereich von $\Omega_t[\Sigma]$ parametrisiert werden kann als $\Sigma = \Sigma(\mathbf{t}')$. Die Wechselwirkungsparameter $\mathbf{U}$ bleiben die Selben. Wenn wir an dem Modell $H = H_0(\mathbf{t}) + H_1(\mathbf{U})$ interessiert sind, dann ist die Funktion $\Omega_t(\mathbf{t}') \equiv \Omega_t[\Sigma(\mathbf{t}')]$ stationär bei $\mathbf{t}' = \mathbf{t}$, also ist $\partial\Omega_t(\mathbf{t}')/\partial\mathbf{t}' = 0$.
Es ist hier wichtig anzumerken, dass $F[\Sigma]$ universal ist, das heißt die funktionale Abhängigkeit ist die Gleiche für jedes $\mathbf{t}$, z.B. bleibt es unverändert für ein Referenzsystem H' mit der selben Wechselwirkung aber anderem Hüpfparameter: $H' = H_0(\mathbf{t}') + H_1(\mathbf{U})$. $F[\Sigma]$ ist universal, da es die Legendretransformation von $\Phi[\mathbf{G}]$ ist, das wiederum universal ist, weil es aus der Summe über alle geschlossenen, irreduziblen und renormalisierten Skelettdiagrammen gebildet wird, die im Gegensatz zu $\mathbf{G}$, nur die Vertize von $\mathbf{U}$ beinhaltet.
Daraus folgt, dass man

$$\Omega_{t'}[\Sigma] = \mathrm{Tr}\ln\left(-(\mathbf{G'}_0^{-1} - \Sigma)^{-1}\right) + F[\Sigma] \tag{2.12}$$

erhält für das Referenzsystem H' mit $\mathbf{G'}_0^{-1} = i\omega + \mu - \mathbf{t}'$. Kombiniert man Gleichungen (2.10) und (2.12), so kann $F[\Sigma]$ eliminiert werden, und man erhält das Funktional:

$$\Omega_t[\Sigma] = \Omega_{t'}[\Sigma] + \mathrm{Tr}\ln\left(-(\mathbf{G}_0^{-1} - \Sigma)^{-1}\right) - \mathrm{Tr}\ln\left(-(\mathbf{G'}_0^{-1} - \Sigma)^{-1}\right) \tag{2.13}$$

Berechnet man das Funktional $\Omega_t[\Sigma]$ für Selbstenergien, die parametrisiert sind als $\Sigma = \Sigma(\mathbf{t}')$, erhält man:

$$\Omega_t[\Sigma(\mathbf{t}')] = \underbrace{\Omega'}_{i} + \underbrace{\mathrm{Tr}\ln\left(-(\mathbf{G}_0^{-1} - \Sigma(\mathbf{t}'))^{-1}\right)}_{ii} - \underbrace{\mathrm{Tr}\ln\left(-\mathbf{G}'\right)}_{iii} \tag{2.14}$$

Hierbei wurde genutzt, dass $\Omega_{t'}[\Sigma(\mathbf{t}')] = \Omega'$ das exakte großkanonische Potential des Referenzsystems H' und $(\mathbf{G'}_0^{-1} - \Sigma(\mathbf{t}'))^{-1} = \mathbf{G}'$ die exakte Greensche Funktion von H' sind. Wenn man annimmt, dass das Referenzsystem H' viel einfacher ist als das Originalsystem H, so dass es exakt berechnet werden kann für jedes $\mathbf{t}'$, das zu einem bestimmten Unterraum des ganzen Raums

der Hüpfparameter gehört. So kann mit Gleichung (2.14) das Funktional $\Omega_t[\Sigma]$ berechnet werden für Testselbstenergien, die aus dem Referenzsystem H' stammen.
Das großkanonische Potential $\Omega_t[\Sigma]$ kann also in dem eingeschränkten Raum der Testselbstenergien exakt berechnet und ein stationärer Punkt bestimmt werden. Die Näherung dieser Methode besteht also darin, den Raum der Testselbstenergien einzuschränken und nicht in einer Näherung der Berechnung des großkanonischen Potentials.
Teil (i) in Gleichung (2.53) entspricht dem großkanonischen Potential des Referenzsystems, also der Grundzustandsenergie.
Der zweite Teil in Gleichung ((2.14) (ii)) wird nach folgendem Schema berechnet:

$$
\begin{aligned}
T\,\mathrm{tr}\,\ln(-\mathbf{G}) &\overset{(a)}{=} -T\sum_{\omega} e^{i\omega 0^+}\,\mathrm{tr}\ln(\mathbf{U}^\dagger(\omega)\mathbf{g}(\omega)\mathbf{U}(\omega)) \\
&\overset{(b)}{=} \frac{-1}{2\pi i}\sum_k \oint_C d\omega e^{\omega 0^+} f(\omega)\ln(-g_k(\omega)) \\
&\overset{(c)}{=} \frac{-1}{\pi}\sum_k \int_{-\infty}^{\infty} d\omega\, f(\omega)\mathrm{Im}\ln(g_k(\omega+i0^+)) \\
&\overset{(d)}{=} -\sum_k \int_{-\infty}^{\infty} d\omega\, f(\omega)\Theta(\omega+\mu-\eta_k(\omega)) \\
&\overset{(e)}{=} -\sum_k \int_{-\infty}^{\infty} d\omega\, T\ln(1+e^{\omega/T})\frac{d\Theta(\omega+\mu-\eta_k(\omega))}{d\omega} \\
&\overset{(f)}{=} -\sum_k \int_{-\infty}^{\infty} d\omega\, T\ln(1+e^{\omega/T})\left(\sum_m \delta(\omega-\omega_m)-\sum_n \delta(\omega-\zeta_n)\right) \\
&\overset{(g)}{=} -2L\sum_m T\ln(1+e^{\omega_m/T}) - R_\Sigma\,. \qquad (2.15)
\end{aligned}
$$

Hierbei ist $T\mathrm{tr}= T\sum_\omega$ die Spur über die fermionischen Matsubarafrequenzen $i\omega_n = i(2n+1)\pi T$ und ln ist der natürliche Logarithmus, $f(\omega) = 1/(\exp(\omega/T)+1)$ ist die Fermifunktion und der Faktor $e^{i\omega 0^+}$ stellt die Konvergenz des Integrals sicher. Zu Beginn wurde in (a) mit Hilfe einer unitären Matrix die Greensche Funktion in Diagonalform $\mathbf{g}(\omega)$ gebracht $\mathbf{G} = \mathbf{U}\mathbf{g}\mathbf{U}^\dagger$. Ist $\mathbf{G}(\omega)$ kausal, folgt für $\mathbf{g}(\omega)$, dass diese Pole erster Ordnung bei $\omega = \omega_m$ mit positiven Residuen hat. Da $\mathbf{t}-\mathbf{\Sigma}(\omega)$ hermitesch ist, kann die Transformation als $\mathbf{t}-\mathbf{\Sigma}(\omega) = \mathbf{U}(\omega)\eta(\omega)\mathbf{U}^\dagger(\omega)$ mit $g_\alpha(\omega) = 1/(\omega+\mu-\eta_\alpha(\omega))$ geschrieben werden, was in Schritt (b) angewandt wurde. Außerdem wurde die Summe über die Residuen umgewandelt in ein Integral um die Pole von $\eta_\alpha(\omega)$. Die $\eta(\omega)$ haben Pole erster Ordnung bei $\omega = \zeta_n$ mit positivem Residuum.
Die Fermifunktion $f(\omega)$ besitzt Pole bei den Matsubarafrequenzen und die Residuen der Pole haben den Wert 1. Dadurch erhält man bei der Integration

über die Funktion $f(\omega)g(\omega)$ mit Hilfe des Residuensatzes

$$\frac{-1}{T}\oint d\omega \frac{1}{e^{\omega/T}+1} g(\omega)e^{\omega 0^+} = \frac{-2\pi}{T}\sum_n g(i\omega_n)e^{i\omega_n 0^+} \tag{2.16}$$

Wobei der Faktor $e^{\omega 0^+}$, wie bereits erwähnt, nur die Konvergenz des Integrals sicherstellt.
Der Integrationsweg C, der ursprünglich nur die Pole der Fermifunktion bei den Matsubarafrequenzen umschließt, kann so umgeformt werden, dass zwei parallele Wege knapp oberhalb der reellen Achse von $-\infty$ nach $+\infty$ und unterhalb der Achse von $+\infty$ nach $-\infty$ entstehen. Dabei darf der Weg verschoben werden, ohne dass sich der Wert des Integrals verändert, nur darf kein Pol überschritten werden. Daraus ergibt sich für das Wegintegral

$$\begin{aligned}
\oint_C d\omega f(\omega)g(\omega) &= \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega f(\omega+i0^+)g(\omega+i0^+) + \int_{+\infty}^{-\infty} d\omega f(\omega-i0^+)g(\omega-i0^+) \\
&\approx \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega f(\omega)\left(g(\omega+i0^+) - g(\omega-i0^+)\right) \\
&= \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega f(\omega)\left(g(\omega+i0^+) - g(\omega+i0^+)^*\right) \\
&= 2i\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega f(\omega)\mathrm{Im}\left(g(\omega+i0^+)\right), \qquad (2.17)
\end{aligned}$$

wie es in Schritt (c) umgeformt wurde.
Setzt man $g(\omega)$ und $\eta(\omega)$ auf der gesamten komplexen Zahlenebene analytisch fort, so erhält man, unter anderem mit Hilfe des Residuensatzes,

$$\begin{aligned}
-\frac{1}{\pi}\mathrm{Im}g(\omega+i0^+) &\geq 0 \\
-\frac{1}{\pi}\mathrm{Im}\eta(\omega+i0^+) &\geq 0\,. \qquad (2.18)
\end{aligned}$$

Transformiert man $g(\omega)$ in Polardarstellung, so erhält man

$$-g(\omega+i0^+) = r(\omega)e^{i\phi(\omega)} \text{ mit } -\pi < \phi(\omega) \leq \pi\,. \tag{2.19}$$

Wendet man darauf den Logarithmus an und nimmt den Imaginärteil, so sieht man leicht

$$\begin{aligned}
\mathrm{Im}(-g(\omega+i0^+)) &= 0^+ \\
\mathrm{Im}\ln(-g(\omega+i0^+)) &= \mathrm{Im}(\ln(r(\omega)) + i\phi(\omega)) = \phi(\omega)\,. \qquad (2.20)
\end{aligned}$$

Daraus folgt, dass $\phi(\omega)$ nur 0 oder π sein kann.

$$\begin{aligned} \phi(\omega) &= \pi \qquad \text{für} - g(\omega) < 0 \\ \phi(\omega) &= 0 \qquad \text{für} - g(\omega) > 0 \end{aligned} \tag{2.21}$$

Mit der Stufenfunktion Θ ergibt sich dann

$$\mathrm{Im}(\ln(-g(\omega + i0^+))) = \pi\Theta(g(\omega)) = \pi\Theta(\frac{1}{g(\omega)}) \tag{2.22}$$

Was hier für g gezeigt wurde, gilt auch für η und wurde in Schritt (d) von Gleichung (2.15) eingesetzt.
Im nächsten Schritt (e) wurde die Fermifunktion als Ableitung bezüglich ω geschrieben und eine partielle Integration wurde durchgeführt. Die Funktion $f(\omega) = \omega + \mu - \eta_\alpha(\omega)$ ist überall analytisch außer an den Polen 1. Ordnung auf der reellen Achse. Daraus folgt, dass $\Theta(f(\omega))$ nahezu überall konstant ist und demnach $\frac{d\Theta(f(\omega))}{d\omega} = 0$, außer an den Stellen, an denen $f(\omega)$ das Vorzeichen wechselt. Da $f(\omega)$ analytisch ist, kann ein Vorzeichenwechsel nur bei Nullstellen ω_n auftreten und erzeugt den Beitrag

$$\delta(f(\omega))f'(\omega) = \sum_m \frac{f'(\omega_m)}{f'(|\omega_m|)}\delta(\omega - \omega_m) \tag{2.23}$$

mit der Ableitung $f' = \frac{df(\omega)}{d\omega}$. Daraus ergeben sich die Polstellen der diagonalisierten Greenschen Funktion $\mathbf{g}(\omega)$, die wiederum positive Residuen besitzen, aus den Nullstellen der Funktion $f(\omega)$. Ein weiterer Beitrag kommt aus den Polen erster Ordnung von $f(\omega)$ bei ζ_n. Die Pole sind die Nullstellen der Funktion $1/f(\omega)$. Dieser Beitrag kommt aus $\Theta(f(\omega)) = \Theta(1/f(\omega))$, da das Vorzeichen durch den Kehrbruch nicht verändert wird. Daraus folgt für den Beitrag der Pole:

$$\delta(1/f(\omega))(1/f)'(\omega) = \sum_n \frac{(1/f)'(\zeta_n)}{(1/f)'(|\zeta_n|)}\delta(\omega - \zeta_n) \tag{2.24}$$

Aus den Gleichungen (2.23) und (2.24) folgt

$$\begin{aligned} \frac{d\Theta(f(\omega))}{d\omega} &= \delta(f(\omega))f'(\omega) + \delta(1/f(\omega))(1/f)'(\omega) \\ &= \sum_m^{\{Nullstellen\}} \varepsilon_m\delta(\omega - \omega_m) + \sum_n^{\{Polstellen\}} \epsilon_n\delta(\omega - \zeta_n) \end{aligned} \tag{2.25}$$

mit $\varepsilon_m = \pm 1$ und $\epsilon_n = \pm 1$, da aber die Nullstellen der Funktion $f(\omega) = \omega + \mu - \eta_k(\omega)$ die Pole der diagonalisierten Greensche Funktion sind, die wiederum positive Residuen haben, folgt für $f'(\omega_m) \to \epsilon_m = +1$. Die Pole von f sind wiederum die Pole der Selbstenergie mit positiven Residuen, also

sind die Residuen von f an den Polen negativ und $(1/f)'(\zeta_n) < 0$, deshalb ist $\epsilon_n = -1$. Zusammengefasst ergibt sich

$$\frac{d}{d\omega}\Theta(\omega + \mu - \eta_k(\omega)) \quad = \quad \sum_m \delta(\omega - \omega_m) - \sum_n \delta(\omega - \zeta_n)\,. \tag{2.26}$$

Im letzten Schritt wurde die Integration über ω ausgeführt, sowie die Summe über α gebildet. Da die $g_\alpha(\omega)$ unabhängig von α die gleichen Pol- und Nullstellen besitzen, ergibt sich aus der Summation über α lediglich der Faktor $2L$, wobei L die Größe der Hüpfmatrix ist (bei der VCA die Anzahl der Gitterplätze pro Cluster) und der Faktor 2 durch die Berücksichtigung des Spins hinzukommt. Außerdem wurde die Summe über die Pole der Selbstenergie abgekürzt durch

$$R_\Sigma = \sum_n T \ln(1 + e^{-\zeta_n/T})\,. \tag{2.27}$$

Für die Einschränkung $T \to 0$ also auch $\beta \to +\infty$, da in dieser Arbeit nur $T = 0$-Rechnungen durchgeführt werden, kann Gleichung (2.15) noch weiter vereinfacht werden

$$\lim_{\beta\to\infty} \frac{\ln(1 + e^{-\beta\omega})}{\beta} \overset{\text{l'Hôpital}}{=} \underbrace{\lim_{\beta\to\infty} \frac{\frac{-\omega e^{-\beta\omega}}{1+e^{-\beta\omega}}}{1}}_{0 \text{ für } \omega > 0} \overset{\text{l'Hôpital}}{=} \underbrace{\lim_{\beta\to\infty} \frac{(-\omega)^2 e^{-\beta\omega}}{-\omega e^{-\beta\omega}}}_{-\omega \text{ für } \omega < 0}\,. \tag{2.28}$$

Dies kann als Θ-Funktion in Gleichung (2.15) eingehen, die dann zu

$$\lim_{T\to 0} -2L \left(\sum_m T \ln(1 + e^{-\omega_m/T}) - R_\Sigma \right) = -2L \left(\sum_m \omega_m \Theta(\omega_m) - R_\Sigma \right) \text{ wird.} \tag{2.29}$$

Jetzt muss nur noch über die negativen Anregungsenergien summiert werden. Für den dritten Beitrag von Gleichung ((2.14) (iii)) kann komplett analog zum zweiten Teil (ii) vorgegangen werden und man erhält

$$T \operatorname{tr} \ln(-\mathbf{G}') = -2L \sum_m T \ln(1 + e^{\omega'_m/T}) - R_\Sigma \tag{2.30}$$

mit ω'_m den Polen der Greensche Funktion $\mathbf{G}'$ des Referenzsystems. Da die Selbstenergie auf dem Gitter im System H mit der Selbstenergie im Referenzsystem H' identisch ist, ist auch R_Σ in beiden Fällen identisch und hebt sich deshalb auf. Zusammengefasst erhält man also für das großkanonische Potential

$$\begin{aligned} \Omega_t[\Sigma(\mathbf{t}')] &= \Omega'(\mathbf{t}') + \operatorname{Tr}\ln(-\mathbf{G})^{-1}) - \operatorname{Tr}\ln(-(\mathbf{G}')^{-1}) \\ \Omega_{2L} = \lim_{T\to 0} \frac{\Omega_t[\Sigma]}{2L} &= \frac{E_0}{2L} - \sum_m \omega_m \Theta(-\omega_m) + \sum_m \omega'_m \Theta(-\omega'_m)\,. \end{aligned} \tag{2.31}$$

Zur Berechnung des großkanonischen Potentials sind also nur noch die Grundzustandsenergie und die Anregungsenergien des Referenzsystems, sowie des originalen Gittermodells nötig.

2.3 Variationelle Cluster Näherung

Die variationelle Cluster Näherung (engl. *variational cluster approximation* VCA) hat sich technisch gesehen aus der CPT entwickelt, beruht aber auf der SFA, wie bereits im vorhergehenden Abschnitt beschrieben. Die Herangehensweise, die Voraussetzungen und die Interpretation des Ergebnisses unterscheiden sich signifikant von der CPT. Während man in der CPT von einem endlich großen Cluster ausgeht, das dann durch störungstheoretische Überlegungen auf das unendliche Gitter ausgebreitet werden kann, geht man in der VCA den umgekehrten Weg. Nach der SFA muss ein Referenzsystem der Art konstruiert werden, dass die identischen Zweiteilchenoperatoren **U** des ursprünglichen Systems beinhaltet sind, das heißt das Referenzsystem muss auch alle Gitterplätze des Originalsystems ausfüllen. Dieses Referenzsystem darf sich in allen Einteilchenoperatoren vom Original unterscheiden und muss exakt berechenbar sein. Dies führt zur selben Aufteilung des Git-

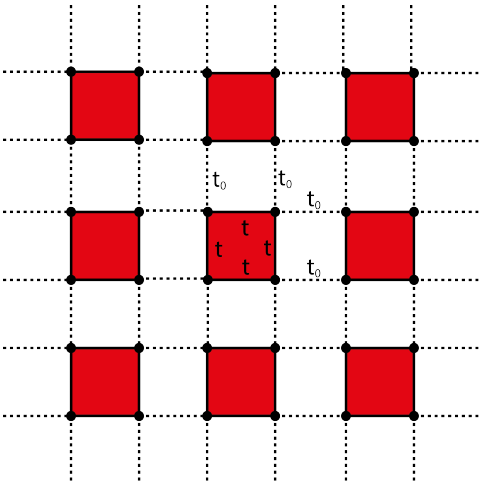


Abbildung 2.2: Das Gitter wird in identische Cluster unterteilt, in dieser schematischen Darstellung mit je vier Plätzen, die das Gitter vollständig ausfüllen müssen. Innerhalb des Clusters sind die Gitterplätze mit der Hüpfamplitude t verbunden während die Amplitude zwischen den Clustern t_0 ist.

ters in identische Cluster, wie bereits im Abschnitt 2.1 für die CPT beschrieben wurde. Das Referenzsystem ist jetzt aber ein unendlich großes System, das aus isolierten Clustern besteht, das heißt die Hüpfterme t_0 in Abbildung 2.1 sind nur im Originalsystem nicht aber im Referenzsystem enthalten, was nach Definition der SFA erlaubt ist. Diese Einteilung bewirkt jetzt, dass das Referenzsystem exakt lösbar ist, da wir eine blockdiagonale Form des Hamiltonians erhalten, wobei jeder Block für einen Cluster steht. Mit Hilfe dieser Clusterlösung lässt sich dann, wie im vorherigen Abschnitt in Gleichung (2.14) beschrieben, das großkanonische Potential berechnen. Die Selbstenergie wird auf isolierte Cluster lokalisiert. Innerhalb dieser Testselbstenergien

kann nun, durch Variation der Einteilchenparameter $\mathbf{t}'$, nach stationären Punkten im Funktional gesucht werden. In der Regel kann man mehrere stationäre Punkte finden, wobei der mit der niedrigsten Energie der physikalisch stabile Grundzustand ist. Dadurch, dass sich das Referenzsystem in der VCA über das gesamte Gitter erstreckt, ist es darüber hinaus möglich langreichweitige, z.B. magnetische oder supraleitende Ordnungen zu untersuchen. Dies geschieht durch explizite Symmetriebrechung mit infinitesimalen Weissfeldern, die im Referenzsystem angelegt werden. Da die CPT die Kopplung der Cluster auf einer störungstheoretischen Ebene behandelt ist es eine notwendige Bedingung, dass $U >> t$. Für die VCA gilt allerdings eine andere Bedingung, die durch die SFA festgelegt ist: das Referenzsystem darf sich nur in Einteilchenoperatoren vom Original unterscheiden, und ist damit allgemeingültiger als die CPT.

Programm `VCA(`$\mathbf{U}, \mathbf{t}$`)`
- **while** $(\nabla_{t'}\Omega)^2 > \varepsilon$ **do**
  - variiere $\mathbf{t}'$
  - `GroßkanonischesPotential(`$\mathbf{U}, \mathbf{t}, \mathbf{t}'$`)`
- **end**
- `Spektralfunktion(`$\mathbf{t}'_{\mathbf{opt}}$`)`
- `Zustandsdichte(`$\mathbf{t}'_{\mathbf{opt}}$`)`
- `Bandlücke(`$\mathbf{t}'_{\mathbf{opt}}$`)`
- `Ordnungsparameter(`$\mathbf{t}'_{\mathbf{opt}}$`)`
- `TopologischeInvariante(`$\mathbf{t}'_{\mathbf{opt}}$`)`

Algorithmus 1 : Das Programm der VCA

Ich werde jetzt im Folgenden die VCA Schritt für Schritt aufbauen und alle Details anhand von Pseudocodes erklären. Das System wird beschrieben von einem Hamiltonian:

$$\mathscr{H} = \mathbf{U} \sum_i n_{i\downarrow} n_{i\uparrow} + \mathbf{t} \sum_{ij\sigma\sigma'} c^\dagger_{i\sigma} c_{j\sigma'} \tag{2.32}$$

dieser enthält Ein- und Zweiteilchenoperatoren $\mathbf{t}, \mathbf{U}$, deshalb werden diese dem Programm `VCA(`$\mathbf{U}, \mathbf{t}$`)` als Parameter übergeben. Das Referenzsystem wird beschrieben von den gleichen Zweiteilchenoperatoren $\mathbf{U}$ und von Einteilchenparametern $\mathbf{t}'$, die in der Regel von $\mathbf{t}$ verschieden sind. Jetzt werden in einem Optimierungsverfahren die Einteilchenparameter variiert, bis ein stationärer Punkt gefunden wurde, d.h. die Bedingung $\frac{\delta\Omega[\Sigma_{t'}]}{\delta t'} = 0$ erfüllt ist. Nachdem ein Stationärer Punkt gefunden wurde, können mit diesen optimierten Einteilchenparametern $\mathbf{t}'_{\mathbf{opt}}$ alle weiteren Größen berechnet werden, z.B. die Spektralfunktion, die lokale Zustandsdichte, die Bandlücke, die Ordnungsparameter oder die topologische Invariante. Diese Größen werden im

Folgenden noch im Detail beschrieben. Ich gehe zunächst auf die Berechnung des Clusters ein. Nach der Einführung der VCA Greenschen Funktion wird im Detail die Berechnung des großkanonischen Potentials sowie der anderen Größen beschrieben.

2.3.1 Berechnung der Clustergrößen

Im Hubbard-Modell sind auf jedem Gitterplatz vier mögliche Konfigurationen erlaubt $|0,0\rangle, |\uparrow,0\rangle, |0,\downarrow\rangle, |\uparrow,\downarrow\rangle$. Daraus ergeben sich $N_{Konf} = 4^{N_c}$ verschiedene Konfigurationen, für ein Cluster mit N_c Gitterplätzen. Innerhalb dieser Basis wird nun der Hamiltonian erzeugt, der eine Matrix der Größe $N_{Konf} \times N_{Konf}$ ist. Durch exakte Diagonalisierung dieser Matrix würde man die volle Information des Referenzsystems erhalten, inklusive aller Energien und Zustandskonfigurationen, was aber nur für sehr kleine Cluster möglich ist. Um den Rechenaufwand zu minimieren führen wir drei getrennte Berechnungen durch, wobei die Anzahl der Konfigurationen durch das Ausnutzen von Symmetrien und Erhaltungsgrößen, wie z.B. Spin und Teilchenzahl, noch weiter eingeschränkt werden. Zunächst wird der Grund-

```
Prozedur Cluster(U, t')
    erzeugeBasis()
    for p=N-1,N+1 do
        erzeugeHamiltonian(p)
        diagonalisiere(H_p)
    end

Ergebnis : |ψ_0⟩, ε_0 im Teilchenraum N_p
|m⟩, ε_m im Teilchenraum N_{p-1}
|n⟩, ε_n im Teilchenraum N_{p+1}
```

Algorithmus 2 : Das Referenzsystem wird erzeugt und berechnet. Daraus erhält man die Energie und die Konfiguration des Grundzustandes, sowie die Energien und die Konfigurationen der Unterräume, die durch Anwenden eines Erzeugers oder Vernichters auf den Grundzustand erreicht werden.

zustand berechnet und die Energie $\varepsilon_0 = \theta_0$ sowie die Konfiguration $|\psi_0\rangle$ gespeichert. Dazu wird, wenn die Teilchenzahl nicht verletzt wird, wie z.B. durch das Anlegen eines supraleitenden Paarungsfeldes, nur der Teilchenunterraum berechnet, der der Füllung des Systems möglichst nahe liegt, mit N_p Elektronen im System. Dann werden die Zustände berechnet, die aus dem Grundzustand durch Anwenden eines Erzeugers bzw. Vernichters erreichbar sind, d.h. durch zwei weitere getrennte Berechnungen für $N_{p-1} = N_p - 1$ und für $N_{p+1} = N_p + 1$. Hier werden jetzt alle Anregungsenergien $\varepsilon_m = \varepsilon_0 - \theta_m$ und die dazugehörigen Konfigurationen $|m\rangle$ für N_{p-1} gespeichert. Für N_{p+1}

sind das die Anregungsenergien $\varepsilon_n = \theta_n - \varepsilon_0$ und die dazugehörigen Konfigurationen $|n\rangle$. Eine vollständige Diagonalisierung ist nur für sehr kleine Cluster möglich. Da aber für größere Cluster $N_c > 4$ der Hamiltonian eine dünn besetzte Matrix ist es möglich diese mit Hilfe der Lanczos oder Band-Lanczos Methode [35, 36] zu diagonalisieren.

Prozedur `diagonalisiere(`*Matrix* $N \times N$`)`
  if *Matrix dicht besetzt* **then**
    use LAPACK
  else if *Matrix dünn besetzt* **then**
    `BandLanczos`
  endif

Ergebnis : N Eigenwerte θ_i und Eigenvektoren $|i\rangle$

2.3.2 Band-Lanczos Methode

Die Lanczos-Methode [40, 41] ist eine Näherungsmethode, um die Eigenwerte und Eigenzustände einer symmetrischen oder hermiteschen Matrix zu bestimmen. Sie basiert darauf eine dünnbesetzte Matrix, durch eine Projektion auf den viel kleineren Krylow-Unterraum [42], die dann vollständig diagonalisiert werden kann. Die Eigenwerte des vollständig konvergierten Krylow-Unterraums sind dann auch Eigenwerte des ursprünglichen Systems. Wir nutzen hier eine Erweiterung des Lanczos Algorithmus, den Band-Lanczos [41]. Der Lanczos Algorithmus ist als Spezialfall des Band-Lanczos, mit nur einem Startvektor, enthalten.
(1) Zunächst wählen wir in `erzeugeStartvektoren(`$\hat{v}_k$`)` die Startvektoren, wobei wir für den Grundzustand, im Teilchenraum N_p, lediglich einen Startvektor brauchen, deshalb setzten wir $p = 1$. Dieser Startvektor wird auf einen Zufallsvektor gesetzt und er muss lediglich einen endlichen Überlapp mit dem tatsächlichen Grundzustand des Systems besitzen, damit der Algorithmus konvergiert. Der Bandlanczos für $N_{-1}(N_{+1})$ startet mit $p = 2N_c$ Startvektoren

$$\hat{v}_k = c_{i\sigma}^{(\dagger)} |\psi_0\rangle \tag{2.33}$$

wobei $k \in \{1 \cdots p\}, i \in \{1 \cdots N_c\}, \sigma \in \{\uparrow, \downarrow\}$.
(2)Die Startvektoren werden vorab orthonormiert zu $\hat{v}'_k$ und die $p \times p$ Transformationsmatrix B wird gespeichert

$$B_{ij} = \hat{v}_i^\dagger \hat{v}'_j \tag{2.34}$$

(3)Der Iterationsschritt beginnt damit, die Norm des Vektors zu berechnen.
(4)Ist die Norm unter einer Schwelle $\|\hat{v}_j\|_2 < \varepsilon_{deflation}$, so wird der Vektor verworfen und alle folgenden Vektoren rücken auf.
(5) Wird der Vektor nicht verworfen, so wird die Norm gespeichert in einer Matrix T und der Vektor wird normiert.
(6) Alle bereits erzeugten und nachfolgende Vektoren werden orthonormiert, wobei die Transformationskoeffizienten in der Matrix T gespeichert werden.
(7) Hier findet die eigentliche Lanczos-Iteration statt: ein neuer Vektor wird erzeugt:

$$\hat{v}_k = \mathscr{H}\hat{v'}_{k-p} \tag{2.35}$$

hierbei ist $k \in \{p+1 \cdots J\}$ und J ist die maximale Größe des betrachteten Krylowraumes.
(8) Die orthonormierten Vektoren $\hat{v}'_k$ spannen eine Basis über dem Krylowraum auf, und werden zusammen in der Matrix V der Dimension $J \times N_{konf}$ dargestellt

$$V_J = \left(\hat{v'}_1, \hat{v'}_2, \cdots \hat{v'}_J\right) \tag{2.36}$$

(9) Die T_J-Matrix ist die Projektion von $\mathscr{H}$ auf den Krylowraum, der von den Vektoren der Basis V_J aufgespannt wird.

$$T_J = V_J \mathscr{H} V_J^\dagger \tag{2.37}$$

Die Größe des Krylowraumes J wird entweder durch Konvergenz bestimmt, oder als Cutoff festgelegt, wobei bei einem Abbruch die Eigenwerte und Eigenvektoren nur noch eine Näherung des Ursprünglichen Operators darstellen. Da der Lanczos Algorithmus aber am Rand des Spektrums schneller konvergiert, sind damit die energetisch günstigen Zustände gut konvergiert und damit gut genähert, was insbesondere für Berechnungen bei $T = 0$ ausreichend ist.
(10) Diagonalisieren dieser Matrix führt uns zu den Eigenwerten des Krylowraumes, die simultane Eigenwerte des eigentlichen Hamiltonians sind.

$$\begin{aligned} T_J &= U D_T U^{-1} \\ &= V_J X D_{\mathscr{H}} X^{-1} V_J^\dagger \end{aligned} \tag{2.38}$$

$$\begin{aligned} \mathscr{H} &= X D_{\mathscr{H}} X^{-1} \\ &\simeq V_J^\dagger U D_T U^{-1} V_J \end{aligned} \tag{2.39}$$

die unitären Matrizen U, X enthalten jetzt die Eigenvektoren des Krylowraumes, bzw. des Hamiltonians. Um z.B. die Grundzustandskonfiguration aus

Prozedur `BandLanczos(`*Matrix A*`)`

(1) **for** *k=1,p* **do** `erzeugeStartvektoren(`$\hat{v}_k$`)`

(2) orthonormiere Startvektoren

setze $\mathcal{I} = \emptyset$

for $j = 1, N_{Iteration}$ **do**

(3) berechne $\|\hat{v}_j\|_2$

(4) **if** $\|\hat{v}_j\|_2 < \varepsilon_{deflation}$ **then**

$\mathcal{I} = \mathcal{I} \cup \{j - p\}$

setze $p = p - 1$

if $p = 0$ **then** stop

for $k = j, j + p - 1$ **do** setze $\hat{v}_k = \hat{v}_{k+1}$

zurück zu (3)

endif

(5) $t_{j,j-p} = \|\hat{v}_j\|_2$ und normiere $\hat{v}_j = \hat{v}_j / t_{j,j-p}$

(6) **for** $k = j + 1, j + p - 1$ **do**

$t_{j,k-p} = \hat{v}_j^\dagger \hat{v}_k$ und $\hat{v}_k = \hat{v}_k - \hat{v}_j t_{j,k-p}$

end

(7) berechne $\hat{v}_{j+p} = A v_j$

(8) **for** $k = max(1, j - p), j - 1$ **do**

$t_{kj} = t_{jk}^*$ und $\hat{v}_{j+p} = \hat{v}_{j+p} - \hat{v}_k t_{kj}$

end

for $k \in \mathcal{I} \cup \{j\}$ **do**

berechne $t_{kj} = \hat{v}_k^\dagger \hat{v}_{j+p}$ und $\hat{v}_{j+p} = \hat{v}_{j+p} - \hat{v}_k t_{kj}$

end

for $k \in \mathcal{I}$ **do**

setze $s_{kj} = t_{kj}^*$

end

(9) setze $T_j^{test} = [t_{ik}]_{i,k=1,\ldots,j} + [s_{ik}]_{i,k=1,\ldots,j}$

(10) **if** $p = 0$ *oder Konvergenz* **then** exit

end

`diagonalisiere(`T_j`)`

(11) rekonstruiere Eigenvektoren

Ergebnis : N_{Iter} Eigenwerte θ_i und Eigenvektoren $|i\rangle$

Algorithmus 3 : Die (Band-)Lanczos Methode. Der Lanczos-Algorithmus ist ein Spezialfall des Band-Lanczos mit nur einem Startvektor

dem Lanczos zu berechnen (11), muss nun der i-te Eigenvektor des Hamiltonians zum i-ten Eigenwert berechnet werden mit:

$$X_i = V_J^\dagger U_i \tag{2.40}$$

Nach Gleichung (2.38) besteht ein einfacher Zusammenhang, zwischen den Eigenvektoren des Hamiltonians und des Krylowraumes, der weiter ausgenutzt werden kann, sodass man die Eigenvektoren des Hamiltonians nicht explizit berechnen muss um die Q-Matrix berechnen zu können, die in Gleichung (2.46) eingeführt wird

$$U_i \simeq V_J X_i = \begin{pmatrix} \langle \hat{v}'_1 | m_i \rangle \\ \langle \hat{v}'_2 | m_i \rangle \\ \vdots \\ \langle \hat{v}'_p | m_i \rangle \end{pmatrix} \tag{2.41}$$

$$U_{1:p} = \begin{pmatrix} \langle \hat{v}'_1 | m_1 \rangle & \langle \hat{v}'_1 | m_2 \rangle & \cdots & \langle \hat{v}'_1 | m_J \rangle \\ \langle \hat{v}'_2 | m_1 \rangle & \langle \hat{v}'_2 | m_2 \rangle & \cdots & \langle \hat{v}'_2 | m_J \rangle \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \langle \hat{v}'_p | m_1 \rangle & \langle \hat{v}'_p | m_2 \rangle & \cdots & \langle \hat{v}'_p | m_J \rangle \end{pmatrix} \tag{2.42}$$

Da die Vektoren $\hat{v}'_{1\ldots p}$ die orthonormierten Startvektoren sind, muss jetzt mit Hilfe der gespeicherten Matrix B nur noch rücktransformiert werden, damit wir die korrekten Einträge der Q-Matrix erhalten.

$$Q = \begin{pmatrix} B^{N-1} U^{N-1} & 0 \\ 0 & B^{N+1} U^{N+1} \end{pmatrix} \tag{2.43}$$

2.3.3 Greensche Funktion in der VCA

Die Greensche Funktion lässt sich in der Lehmanndarstellung ausdrücken

$$\mathscr{G}_{\alpha\beta}(i\omega_n) = \frac{1}{Z} \sum_{m,n} e^{-\beta E_m} \left(1 - e^{(i\omega_n + E_m - E_n)\beta}\right) \frac{\langle m|\hat{c}_\alpha|n\rangle \langle n|\hat{c}^\dagger_\beta|m\rangle}{i\omega_n + E_m - E_n}$$

$$\lim_{T\to 0} \mathscr{G}_{\alpha\beta}(i\omega_n) = \sum_m \frac{\langle \psi_0|\hat{c}^\dagger_\beta|m\rangle \langle m|\hat{c}_\alpha|\psi_0\rangle}{i\omega_n - (E_0 - E_m)} + \sum_n \frac{\langle \psi_0|\hat{c}_\alpha|n\rangle \langle n|\hat{c}^\dagger_\beta|\psi_0\rangle}{i\omega_n - (E_n - E_0)}\,. \tag{2.44}$$

Die Zustände $|m\rangle, |n\rangle$ sind in den Teilchenräumen $N_{m,n} = N_p \pm 1$, wenn der Grundzustand $|\psi_0\rangle$ im Teilchenraum N_p ist. In dieser Darstellung kann man die Cluster Greensche Funktion sehr einfach berechnen. Fasst man die Anregungsenergien zu $\omega'_m = E_m - E_n$ zusammen und bezeichnet man eine Anregung aus dem Zustand m nach n mit dem Index $i = (m, n)$, so ergibt sich

$$\mathbf{G}'_{\alpha\beta}(\omega) = \sum_m Q_{\alpha i} \frac{1}{\omega - \omega'_i} Q^\dagger_{i\beta} \tag{2.45}$$

wobei $\alpha, \beta =$ (Platz i, Spin σ) sich auf die Einteilchenorbitale des Clusters beziehen, Ort und Spin zugleich beinhalten. Die Q-matrix ist wie folgt definiert

$$\begin{aligned} Q_{\alpha m} &= \langle m|c_\alpha|n\rangle \sqrt{\frac{e^{-\beta E_m} + e^{-\beta E_n}}{Z'}} \\ &\overset{T=0}{=} \langle \psi_0|c_\alpha|n\rangle + \langle m|c_\alpha|\psi_0\rangle \end{aligned} \tag{2.46}$$

Hier sind $Z' = \sum_m e^{-\beta E_m}$ die großkanonische Zustandssumme und $|\psi_0\rangle$ der Grundzustand des Referenzclusters. Das spektrale Gewicht, das Residuum, von $\mathbf{G}'_{\alpha\beta}(\omega)$ an einem Pol $\omega = \omega'_i$ ist gegeben durch $Q_{\alpha i} Q^\dagger_{i\beta}$. Führt man noch eine Diagonalmatrix ein, die die Anregungsenergien beinhaltet, $g_{ij}(\omega) = \delta_{ij}/(\omega - \omega'_i)$ so erhält man in Matrixschreibweise:

$$\mathbf{G}'(\omega) = \mathbf{Q}\mathbf{g}(\omega)\mathbf{Q}^\dagger \tag{2.47}$$

Unter bestimmten Umständen ist es notwendig mehrere Cluster zu einem Supercluster zusammenzufassen, welches dann wieder periodisch auf das gesamte Gitter fortgesetzt werden kann. Auf dem Dreiecksgitter ist diese Konstruktion notwendig, da man versucht die Gittersymmetrien auf dem Cluster möglichst hoch zu erhalten, was zu dreieckigen Clustern führt. Diese dreieckigen Cluster können aber nur für $N_c = 3$ das Gitter vollständig ausfüllen. Für alle größeren Cluster wird ein Supercluster benötigt, das sich aus dem Cluster und einer gespiegelten Version des Clusters zusammensetzt, wie in Abbildung 3.5 dargestellt. Eine andere Anwendung findet sich bei der Berechnung von Randzuständen topologischer Isolatoren, die in Abschnitt 4.2.2.2 beschrieben werden. Hierbei müssen die Ränder einer Probe weit genug von einander entfernt sein und eine periodische Fortsetzung findet nur in einer Richtung statt. In unseren Rechnungen für das Honigwaben-Gitter sind die Ränder mindestens 16 Einheitszellen voneinander entfernt, was einer minimalen Clustergröße von 32 Gitterplätzen entsprechen würde. Da dies die Rechenkapazitäten bei weitem überschreiten würde wird auch hier ein Supercluster benutzt, bei dem mehrere kleinere Cluster übereinander gestapelt werden. Die Greensche Funktion des Superclusters G' wird dann definiert als

$$G'^{-1} = \begin{pmatrix} G'^{-1}_1 & t_{1,2} & & & & \\ t_{2,1} & G'^{-1}_2 & t_{2,3} & & & \\ & t_{3,2} & G'^{-1}_3 & t_{3,4} & & \\ & & \ddots & \ddots & \ddots & \\ & & & t_{n-1,n-2} & G'^{-1}_{n-1} & t_{n-1,n} \\ & & & & t_{n,n-1} & G'^{-1}_n \end{pmatrix} \tag{2.48}$$

und hat die Dimension $2N_c \times n$. G'_i sind Greensche Funktionen der einzelnen Cluster, die meistens identisch sind oder durch einfache Transformation aus

einander hervorgehen. $t_{i,i+1}$ ist die Hüpfmatrix, die die beiden Cluster G'_i und G'_{i+1} verbindet.
In die Berechnung der Cluster Greenschen Funktion gingen nur die Einteilchenoperatoren $\mathbf{t}'$ ein. Zur Berechnung der vollen Greenschen Funktion definieren wir einen Operator der den Unterschied zwischen Referenzsystem und Original beschreibt

$$\mathbf{V} = \mathbf{t} - \mathbf{t}' \tag{2.49}$$

wobei $\mathbf{t}$ die Einteilchenoperatoren des Gesamtsystems ist. Mit der Dysongleichung und der Darstellung der wechselwirkungsfreien Greenschen Funktion $G_0^{-1} = \omega + \mu - \mathbf{t}$ kann in der VCA die Gitter Greensche Funktion geschrieben werden als

$$\mathbf{G} \equiv \frac{1}{\mathbf{G}_0^{-1} - \mathbf{\Sigma}} = \frac{1}{(\mathbf{G}')^{-1} - \mathbf{V}}\,. \tag{2.50}$$

Dieser Ausdruck kann wieder mit Hilfe der Q-Matrizen und der Gleichungen (2.46) und (2.47) transformiert werden zu

$$\begin{aligned} \mathbf{G} = \quad & \frac{1}{(\mathbf{QgQ}^\dagger)^{-1} - \mathbf{V}} = \mathbf{QgQ}^\dagger + \mathbf{QgQ}^\dagger \cdot \mathbf{VQgQ}^\dagger + \ldots \\ = \quad & \mathbf{Q}(\mathbf{g} + \mathbf{g} \cdot \mathbf{QVQ}^\dagger \cdot \mathbf{g} + \ldots)\mathbf{Q}^\dagger = \mathbf{Q}\frac{1}{\mathbf{g}^{-1} - \mathbf{Q}^\dagger\mathbf{VQ}}\mathbf{Q}^\dagger\,. \end{aligned} \tag{2.51}$$

$\mathbf{g}^{-1} = \omega - \mathbf{\Lambda}$ ist die, wie bereits für Gleichung (2.47) eingeführte Matrix, mit $\mathbf{\Lambda}_{mn} = \delta_{mn}\omega'_m$ den Anregungsenergien des Referenzclusters. Die Pole der Gitter Greensche Funktion $\mathbf{G}$ sind jetzt einfach die Eigenwerte der Matrix $\mathbf{M} = \mathbf{\Lambda} + \mathbf{Q}^\dagger\mathbf{VQ}$. Die Dimension von $\mathbf{M}$ ist gegeben durch die Anzahl der Pole der Cluster Greensche Funktion $\mathbf{G}'$ mit nicht verschwindendem Gewicht. Ist $\mathbf{D}_M = \mathbf{S^{-1}MS}$ die diagonalisierte Matrix von $\mathbf{M}$, lässt sich die Gitter Greensche Funktion noch umformen

$$\mathbf{G} = \mathbf{Q}\frac{1}{\mathbf{M}}\mathbf{Q}^\dagger = \mathbf{Q}\frac{1}{\mathbf{SD_MS}^\dagger}\mathbf{Q}^\dagger = \mathbf{QS}\frac{1}{\mathbf{D_M}}\mathbf{S}^\dagger\mathbf{Q}^\dagger\,. \tag{2.52}$$

wodurch sich die Gewichte der Pole ω_m der Gitterfunktion zu $(\mathbf{QS})_{\alpha m}(\mathbf{S}^\dagger\mathbf{Q}^\dagger)_{m\beta}$ berechnen lassen. Die Greensche Funktion in der Form von Gleichung (2.51) oder (2.52) bezeichnen wir als die VCA Greensche Funktion und geht in die Berechnungen aller folgenden Größen ein.

2.3.4 Großkanonisches Potential

Ausschlaggebend in der VCA ist das großkanonische Potential, welches die Grundzustandsenergie des Systems wiedergibt. Das großkanonische Potential des Systems lässt sich in verschiedenen Phasen berechnen und miteinander

vergleichen, wobei sich das System, dem Prinzip der geringsten Energie folgend, immer in der Phase der geringsten Energie befindet. Die Berechnung des großkanonischen Potentials $\Omega_t[\Sigma(\mathbf{t}')]$ für einen gegebenen Satz an Einteilchenoperatoren $\mathbf{t}'$ in dem Referenzsystem mit H' auf dem Cluster, geht jetzt relativ einfach, enthält aber einige technische Schwierigkeiten, die im Folgenden diskutiert werden [29]. Gleichung (2.14) besteht aus drei Beiträgen, die einzeln abgehandelt werden. Hier noch einmal zur Erinnerung:

$$\Omega_t[\Sigma(\mathbf{t}')] = \Omega' - \mathrm{Tr}\ln\left(-\mathbf{G}'\right) + \mathrm{Tr}\ln\left(-(\mathbf{G}_0^{-1} - \Sigma(\mathbf{t}'))^{-1}\right)$$

$$\Omega_{2L} = \lim_{T\to 0}\frac{\Omega_t[\Sigma]}{2L} = \underbrace{\frac{E_0}{2L}}_{i} + \underbrace{\sum_m \omega'_m\Theta(-\omega'_m)}_{ii} - \underbrace{\sum_m \omega_m\Theta(-\omega_m)}_{iii}\,. \qquad (2.53)$$

Die Berechnung des Großkanonischen Potentials wird in Algorithmus 4 beschrieben

Prozedur `GroßkanonischesPotential`$(\mathbf{U}, \mathbf{t}, \mathbf{t}')$

(1) `Cluster`$(\mathbf{U}, \mathbf{t}')$
(2) `erzeugeQmatrix()`
(3) `erzeugeVmatrix`$(\mathbf{t} - \mathbf{t}')$
(4) $\Omega = \varepsilon_0$
(5) **foreach** $\varepsilon_m < 0$ **do** $\Omega = \Omega + \epsilon_m$
foreach $\varepsilon_n < 0$ **do** $\Omega = \Omega + \epsilon_n$
(6) **foreach** $k \in BZ$ **do**
`erzeugeVq`(k)
$\mathbf{M} = \mathbf{\Lambda} + \mathbf{Q}^\dagger\mathbf{V}_k\mathbf{Q}$
`diagonalisiere(M)`
foreach $\theta_i < 0$ **do** $\Omega = \Omega + \theta_i$
end

Ergebnis : Das großkanonische Potential $\Omega(\mathbf{U}, \mathbf{t}, \mathbf{t}')$

Algorithmus 4 : Berechnung des großkanonischen Potentials

Zunächst (1) wird das Referenzsystem erstellt. In (2) und (3) werden die Hilfsmatrizen Q und V erzeugt. Dann wird in (4) der erste Teil (i) des Großkanonischen Potentials wie in Gleichung (2.53) beschrieben ist berechnet, dieser entspricht dem großkanonischen Potential des Clusters:

$$\Omega'(\mathbf{t}') = -T\ln\mathrm{tr}\,e^{-(H'-\mu N')/T} = -Tln\sum_m e^{-(E'_m-\mu N'_m)/T}\,. \qquad (2.54)$$

Für $T \to 0$ entspricht dies $E_0 - \mu N'$, also genau die Grundzustandsenergie ε_0. Der Term lässt sich für kleine Cluster sogar durch vollständige exakte Diagonalisierung, beziehungsweise mit numerischen Diagonalisierungsmethoden,

wie der Lanczosmethode [43], berechnen.
Der nächste Schritt (5) beschreibt eine Summe über die Pole der Cluster Greenschen Funktion, dies sind exakt die Anregungsenergien des Referenzsystems und bildet die zweite Summe (ii) der Gleichung (2.53).
Der dritte Teil von Gleichung (2.53) wird in der Schleife (6) beschrieben, die über die diskretisierte Brillouinzone des Systems integriert. Gesucht sind die Pole der VCA Greenschen Funktion, d.h. es wird für jeden Impuls die dichtbesetzte Matrix $\mathbf{M}$ berechnet und dann diagonalisiert. Da diese Matrix dichtbesetzt ist, kann hier keine Näherungsmethode benutzt werden, sie muss vollständig diagonalisiert werden. Die Dimension dieser Matrix entspricht der Anzahl der Anregungszuständen des Clusters. Da der Aufwand einer Diagonalisierung exponentiell mit der Dimension der Matrix steigt ist es hier essentiell, die Dimension so klein wie möglich zu halten. Dies erreichen wir mit einer geschickten Wahl des Cutoffs J beim Bandlanczos. Dieser Schritt, der Berechnung des großkanonischen Potentials, enthält also, neben der Clusterdiagonalisierung, den größten numerischen Aufwand.

2.3.5 Spektralfunktion

Die Spektralfunktion lässt sich wie bereits im Abschnitt über die CPT beschrieben aus dem Imaginärteil der Greenschen Funktion berechnen. Zur Erinnerung

$$A(\mathbf{k},\omega) = \lim_{\eta\to 0^+} -\frac{1}{\pi}\Im G\left(\mathbf{k},\omega+i\eta\right) . \tag{2.55}$$

Um die Spektralfunktion darstellen zu können muss eine spektrale Verbreiterung $i\eta$ eingeführt werden. Deshalb wird die Greensche Funktion jetzt nicht in der Darstellung von Gleichung (2.52) gewählt, wo die Gewichte der Polstellen direkt eingehen. Wir wählen folgende Darstellung wie in Gleichung (2.51)

$$\mathbf{G} = \frac{1}{\mathbf{G'}^{-1} - \mathbf{V}} \tag{2.56}$$

$$= \frac{1}{(\mathbf{Q}\mathbf{g}\mathbf{Q}^\dagger)^{-1} - \mathbf{V}} \tag{2.57}$$

wobei $\mathbf{g}^{-1} = \omega - \mathbf{\Lambda} + i\eta$ die bereits für Gleichung (2.47) eingeführte Matrix ist, mit $\mathbf{\Lambda}_{mn} = \delta_{mn}\omega'_m$ den Anregungsenergien des Referenzclusters. Zusätzlich kommt jedoch die spektrale Verbreiterung $i\eta$ hinzu. Im Algorithmus 5 wird zunächst (1) das Cluster berechnet mit den optimierten Einteilchenparametern $\mathbf{t'}_{opt}$ um daraus in (2) die Q-Matrix zu erzeugen. Die Cluster Greensche Funktion in (3) ist unabhängig von dem Impuls $\mathbf{k}$, deshalb muss diese nur einmal berechnet werden, hierbei kommt aber jetzt die Energieabhängigkeit der Greenschen Funktion hinzu und muss mit der spektralen Verbreiterung $i\eta$ behaftet werden. (4) Die Schleife enthält jetzt alle Impulse

Prozedur `Spektralfunktion(t')`

(1) `Cluster(U, t'_opt)`
(2) `erzeugeQmatrix()`
(3) `berechneClusterG(ω)`
(4) **for k do**
(5) `erzeugeVmatrix(k)`
(6) $\mathbf{G}(\mathbf{k},\omega) = (\mathbf{G}'(\omega)^{-1} - \mathbf{V}(\mathbf{k}))^{-1}$
end

Ergebnis : Spektralfunktion $A(k,\omega)$

Algorithmus 5 : Berechnung der Spektralfunktion

die auf dem charakteristischen Pfad liegen um die Spektralfunktion möglichst aussagekräftig darzustellen. Mögliche charakteristische Pfade, für die jeweiligen Gitter sind, in den Brillouinzonen darüber, rot eingezeichnet.

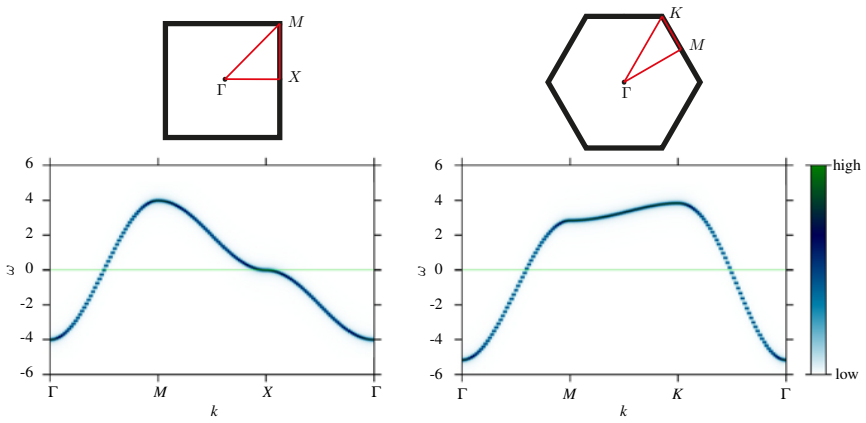


Abbildung 2.3: Die Spektralfunktion $A(\mathbf{k},\omega)$ des wechselwirkungsfreien Quadratgitters (links) und des isotropen Dreiecksgitters (rechts) berechnet mit der VCA und einer spektralen Verbreiterung von $\eta = 0.05$, jeweils bei Halbfüllung. Der Pfad durch die Brillouinzone ist jeweils darüber gezeigt.

2.3.6 Observablen

Mit der VCA Greenschen Funktion aus Gleichung (2.52) lassen sich Erwartungswerte von Operatoren $\mathbf{O}$, die sich darstellen lassen als $O_{\alpha\beta}c^\dagger_\alpha c_\beta$, berechnen. Zum Beispiel kann die mittlere Teilchenzahl pro Gitterplatz so berechnet werden, denn $\mathbf{n} = c^\dagger_\alpha c_\alpha$, mit $\alpha = (i, \sigma)$. Damit wird der Erwartungswert zu

$$\langle \mathbf{n} \rangle = \frac{2i}{N_c} \int\limits_{k\in 1.BZ} \frac{d^2k}{(2\pi)^2} \int\limits_{\omega} \sum_{\alpha} G_{\alpha\alpha}(i\omega, k) = \frac{1}{N_c} \sum_{k\in 1.BZ} \frac{1}{N_k} \sum_{m}^{\omega_m<0} \sum_{\alpha} (\mathbf{QS})_{\alpha m} (\mathbf{S}^\dagger \mathbf{Q}^\dagger)_{m\alpha} \tag{2.58}$$

Hierbei wurde der Residuensatz ausgenutzt und das Integral über die Energien ausgewertet als Summe über die Gewichte der Pole mit $\omega_m < 0$. Das Integral über die Impulsvektoren der ersten Brillouinzone wurde diskretisiert und in eine Summe gleichmäßig verteilter Impulse innerhalb der ersten Brillouinzone umgewandelt.

2.4 Einfluss der Variationsparameter auf die Qualität der Lösung

In der VCA werden, innerhalb eines Unterraums von Testselbstenergien, stationäre Lösungen für das Funktional $\Omega[\Sigma_{t'}]$ gesucht. Das heißt, prinzipiell kann jeder beliebige Einteilchenoperator als Variationsparameter im Referenzsystem erscheinen und geht dann in die V-Matrix in Gleichung (2.49) ein. Einige Beispiele dieser Variationsparameter sind z.B. das chemische Potential ε, symmetriebrechende Weissfelder, die Hybridisierung zu nicht korrelierten Badplätzen t_B und deren chemisches Potential ϵ_B oder auch das Hüpfen t, das die Bandstruktur bestimmt. Der Einfluss dieser Variationsparameter wird im Folgenden an Hand von Beispielen gezeigt, die im Detail in dieser Arbeit noch ausführlicher besprochen werden.

2.4.1 Das chemische Potential

Der wichtigste Variationsparameter in der VCA ist das chemische Potential, denn erst durch seine Variation ist die thermodynamische Konsistenz gegeben. Thermodynamische Konsistenz ist gegeben wenn die Teilchenzahl berechnet durch Integration der Zustandsdichte

$$n = -\frac{1}{\pi N_c} \int_{-\infty}^{0} \mathrm{Tr}(\Im G(\omega)) \tag{2.59}$$

und durch Ableiten des großkanonischen Potentials nach dem chem. Potential identisch sind

$$n = -\frac{d\Omega}{d\mu}\,. \tag{2.60}$$

Das Hubbard-Modell auf dem isotropen Dreiecksgitter, das in Kapitel 3.2 noch genauer behandelt wird, hat für kleine Wechselwirkung eine metallische Phase und wird für große Wechselwirkungsstärken magnetisch geordnet. Für einen Bereich dazwischen $5.4 < U < 9.4$ findet man eine nichtmagnetische Isolatorphase. Sieht man sich die Füllung des Systems in Abhängigkeit des chemischen Potentials an, so findet man eine Zunahme der Füllung des Systems bis zum Erreichen von Halbfüllung bei $n = 1$, was einem Teilchen pro Gitterplatz entspricht. Bei Halbfüllung findet man ein Plateau, das heißt bei weiterer Erhöhung des chemischen Potentials nimmt die Füllung des Systems nicht weiter zu, man befindet sich in der isolierenden Bandlücke. Erst wenn das chemische Potential das Leitungsband berührt, den oberen Rand der Bandlücke erreicht hat, nimmt die Füllung wieder zu. Dies ist nun in Abbildung 2.4 gezeigt, und man sieht, dass ohne die Variation des chemischen Potentials, die Füllung des Systems abhängt von der Art der Berechnung nach Gleichung (2.59) oder (2.60). Die Füllung innerhalb der isolierenden Bandlücke ist nicht einmal bei Halbfüllung $n \neq 1$, bei der Integration über die Zustandsdichte. Dagegen liegen die Kurven identisch übereinander, wenn die Variation des chemischen Potentials korrekt durchgeführt wird. Das bedeutet, die thermodynamische Konsistenz ist sichergestellt.

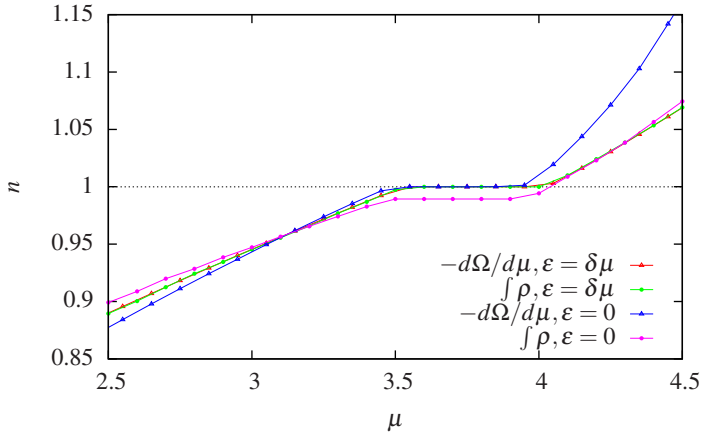


Abbildung 2.4: Teilchenzahl als Funktion des chemischen Potentials bei $U = 6$ berechnet auf dem drei Platz Cluster. Thermodynamische Konsistenz ist nur gegeben wenn das chemische Potential variiert wird $\varepsilon = \delta\mu$, dann stimmt die Teilchenzahl überein bei $n = -\frac{d\Omega}{d\mu} = -\frac{1}{\pi N_c}\int_{-\infty}^{0} Tr(ImG(\omega))$

2.4.2 Symmetriebrechende Weissfelder

Symmetriebrechende Weissfelder sind virtuelle Felder die im Referenzsystem angelegt werden um eine Symmetriebrechung zu erreichen, die bei ED nicht durch spontane Symmetriebrechung erreichbar sind. Mit der VCA können langreichweitige Ordnungen, wie z.B. Antiferromagnetismus oder Supralei-

tung, beschrieben werden, da sich das Referenzsystem über das gesamte Gitter erstreckt und aus ungekoppelten Clustern besteht. Die Weissfelder werden im Referenzsystem angelegt und werden dann in der V-Matrix aus Gleichung (2.49) wieder abgezogen, da sie im ursprünglichen System nicht enthalten sind. Sie dürfen nach Definition der SFA nur Einteilchenoperatoren enthalten und müssen die gleiche Periodizität besitzen wie die Cluster oder gegebenenfalls der Supercluster.
Im Quadratgitter sowie dem Honigwabengitter erhält man eine antiferromagnetische langreichweitige Ordnung, die durch folgendes Weissfeld beschrieben werden kann:

$$\mathscr{H}^{\alpha} = h^{\alpha} \sum_{i} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r_i}} c^{\dagger}_{i\sigma} \tau^{\alpha}_{\sigma\sigma'} c_{i\sigma'} \tag{2.61}$$

$$\tag{2.62}$$

wobei die Richtung der magnetischen Ordnung durch die Wahl von $\alpha \in \{x, y, z\}$ festgelegt wird und die jeweilige Paulimatrix τ^{α} eingesetzt wird. Der Ordnungsvektor $\mathbf{Q}$ ist abhängig von der Art des Gitters: das Quadratgitter hat den bekannten Ordnungsvektor $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$, während der Ordnungsvektor auf dem Honigwabengitter bei $\mathbf{Q} = \mathbf{K} = (\frac{2\pi}{3}, \frac{2\pi}{\sqrt{3}})$ ist.
Auf dem isotropen Dreieckgitter erhält man für starke Wechselwirkung eine 120°-Néel Ordnung, die durch das folgende Weissfeld beschrieben wird

$$\mathscr{H}^{120} = h^{120} \sum_{i} e^{i\mathbf{K}\mathbf{r_i}} c^{\dagger}_{i\sigma} \left(\tau^{x}_{\sigma\sigma'} + \tau^{y}_{\sigma\sigma'} \right) c_{i\sigma'} \tag{2.63}$$

Die Variationsparameter sind h_{α} bzw. h_{120}, sie geben die Stärke des Feldes an. In der Regel findet man einen stationären Punkt bei $h = 0$, der der symmetrischen Lösung entspricht. Findet man zusätzlich einen stationären Punkt mit endlichem Weissfeld $h \neq 0$, und ist diese Lösung energetisch günstiger, als die bei $h = 0$, so ist der Grundzustand des Systems symmetriegebrochen. Für das Honigwabengitter ohne Spin-Bahn-Kopplung wurde in Abbildung 2.5 das großkanonische Potential als Funktion des symmetriebrechenden Weissfeldes gezeigt. Für $U = 3.5$ sieht man, dass lediglich ein stationärer Punkt bei $h_z = 0$ existiert, d.h. das System ist stabil gegen diese Symmetriebrechung. Für größere Wechselwirkung $U > 4$ erhält man einen weiteren stationären Punkt für $h_z \neq 0$, der die symmetriegebrochene Lösung angibt. Das System kann also in einen symmetriegebrochenen Zustand übergehen und dadurch Energie gewinnen.

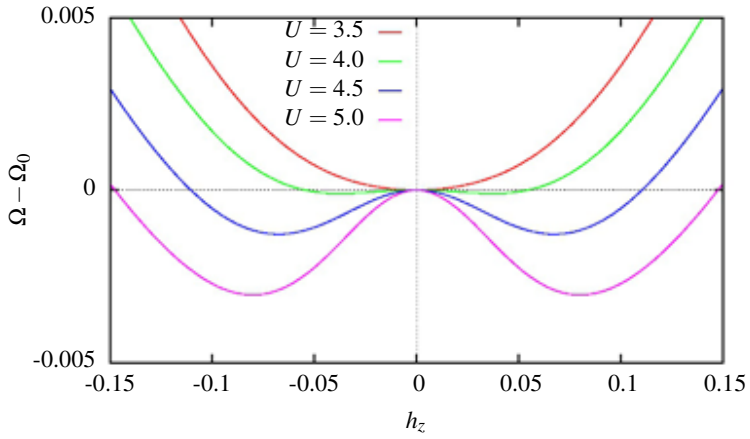


Abbildung 2.5: Das großkanonische Potential als Funktion des antiferromagnetischen Weissfeldes für das Graphen ohne Spin-Bahn-Kopplung. Für $U = 3.5$ ergibt sich lediglich bei $h_z = 0$ ein stationärer Punkt. Für $U > 4$ bilden sich zusätzlich noch stationäre Punkte für $h_z \neq 0$.

2.4.3 Nichtkorrelierte Badplätze

Nichtkorrelierte Badplätze bieten eine weitere Möglichkeit die Testselbstenergie des Referenzsystems zu verbessern. Dazu werden an jeden Gitterplatz ein oder mehrere Badplätze gekoppelt, auf denen keine Coulombabstoßung wirkt. Die Badplätze sind nur Virtuelle Gitterplätze und sind im original System nicht enthalten, deshalb müssen alle Einteilchenoperatoren die mit ihnen verbunden sind in der V-Matrix wieder abgezogen werden. Sie besitzen ein chemisches Potential ε_b und eine Badhybridisierung t_b, mit der sie an die korrelierten Gitterplätze ankoppeln. Mit jedem Badplatz kommen also zwei Variationsparameter hinzu. Badplätze erweitern die Dynamik der Clusterselbstenergie. Zusätzlich schaffen die Badplätze auch ein Spin und Ladungsreservoir, wodurch es z.B. möglich ist, das System kontinuierlich zu dotieren. In einem Teilchenlochsymmetrischen System stellen sich die chem. Potentiale

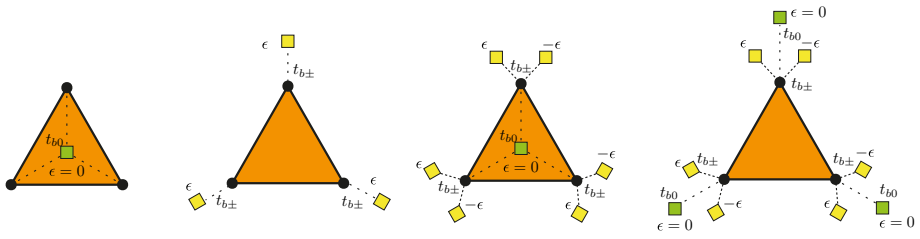


Abbildung 2.6: Verschiedene Szenarien für ein drei Platz Cluster mit bis zu sieben nichtkorrelierten Badplätzen. Zu jedem Badplatz gehört eine Badhybridisierung t_b, die Kopplung an mindestens einen Korrelierten Gitterplatz, und ein chemisches Potential

der Badplätze symmetrisch um das Fermienergie ein, d.h. bei einer ungera-

den Zahl an Badplätzen je korreliertem Gitterplatz ist ein Badplatz am Fermienergie. Besitzt dieser Badplatz eine endliche Hybridisierung, so injiziert dieser Zustände an der Fermienergie des Systems, was zu einer metallischen Phase führen muss. Beim Übergang zum Isolator muss dieser Badplatz abkoppeln, d.h. die Hybridisierung geht gegen Null, es werden keine Zustände injiziert. Ist der Badplatz abgekoppelt, ist es so als wäre er nicht vorhanden. Dies führt dazu, dass eine gerade Anzahl von Badplätzen je korreliertem Gitterplatz isolierende Phasen beschreiben. Im Falle des Dreieckgitters, in dem keine Teilchenlochsymmetrie besteht, ordnen sich Badplätze jetzt zwar nicht symmetrisch um die Fermienergie an, aber die Argumentation bezüglich gerader und ungerader Anzahl von Badplätzen bleibt bestehen, die metallische Phase wird mit ungeraden Anzahl an Badplätzen beschrieben, von denen ein Badplatz am Übergang zum Isolator abkoppelt.

2.4.4 Die Variation der Hüpfparameter

Die Variation der Hüpfparameter ist ein weiterer Freiheitsgrad, der durch die SFA erlaubt ist. In den meisten Fällen wurde bisher das Hüpfen, das die Bandstruktur bestimmt, nicht als Variationsparameter behandelt. Die Variation des Hüpfens stellt kein physikalisches Gesetz sicher, wie die Variation des chemischen Potentials. Durch die Variation des Hüpfens wird zunächst auch keine Symmetrie gebrochen, wie durch das Anlegen der Weissfelder des vorhergehenden Abschnittes. Es hat sich aber herausgestellt, dass eine Variation des Hüpfens, vor allem für kleine Wechselwirkungsstärken $U < 8$, die Bandstruktur renormiert, wodurch sich die kritischen Werte der Phasenübergänge deutlich verschieben können. Um den Effekt des variierten Hüpfens zu untersuchen sehen wir uns das Kane-Mele-Hubbard-Modell (KMH) auf dem Honigwabengitter an, das im Detail erst später in Abschnitt 4.2 behandelt wird. Das KMH hat zusätzlich zum Hubbard-Modell auf dem Honigwabengitter noch einen Spin-Bahn Term, der zu einer topologischen Isolatorphase für kleine Wechselwirkungsstärken führt. Bereits die wechselwirkungsfreie Bandstruktur hat eine Bandlücke, die dann mit zunehmender Wechselwirkung zunächst immer kleiner wird, bis die Lücke am Phasenübergang zum trivialen Mottisolator vollständig geschlossen ist. Nach dem Phasenübergang geht die Bandlücke mit weiter zunehmender Wechselwirkung, wie gewöhnlich in einem Mottisolator, weiter auf. Wir untersuchen jetzt den Einfluss der Variation der Hüpfparameter, die in die Bandstruktur einfließen, also das normale nächste Nachbarhüpfen und die Kane-Mele-Kopplung. Die Bandstruktur innerhalb des Clusters wird durch die Wechselwirkung renormiert, die nur hier wirkt. Die Interclusterhüpfen gehen dagegen wechselwirkungsfrei in die Bandstruktur des Systems ein, was zu einer deutlichen Anisotropie führt. Für schwache Wechselwirkung hat diese Renormierung des Hüpfens durch die Wechselwirkung einen sehr starken Einfluss, wie man z.B. direkt in der Spektralfunktion, in Abbildung 2.7, sehen kann. Im linken Spektralplot (a)

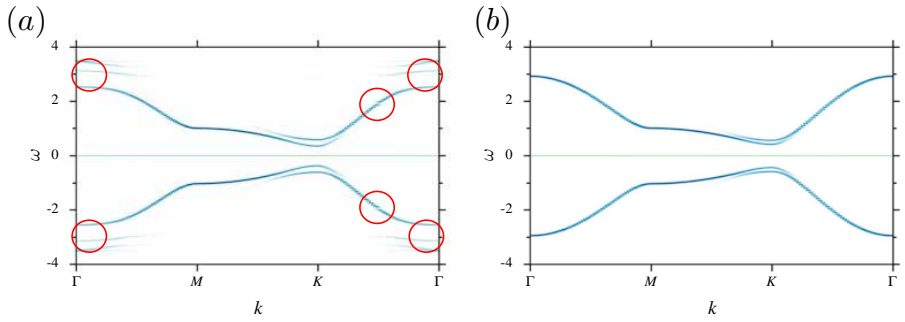


Abbildung 2.7: Spektralfunktion des Kane-Mele-Hubbard-Modells mit schwacher Wechselwirkung $U = 2$ und Spin-Bahn-Kopplung $\lambda = 0.1$. (a) Es wurde nur das chemische Potential, nicht aber das Hüpfen variiert. Es wurden Stellen mit roten Kreisen markiert, die unphysikalische Bandlücken oder Verschiebungen in der Bandstruktur zeigen. (b) Zusätzlich zum chem. Potential wurde auch das Hüpfen variiert.

wurde nur das chemische Potential variiert, nicht aber das Hüpfen. Die Renormierung der Bandstruktur durch die Wechselwirkung hat zur Folge, dass die Bandstruktur aufgebrochen wird, wie durch die roten Kreise markiert. Werden die Hüpfparameter korrekt als Variationsparameter betrachtet, so erhält man ein wesentlich kohärenteres Band. Dieses ist auch am Γ-Punkt, weit vom chemischen Potential entfernt, noch weitgehend kohärent, nicht so aufgespalten wie in (a) und nahezu am wechselwirkungsfreien Wert. Man sieht jedoch klar den Einfluss der Wechselwirkung am K-Punkt, wo die Bänder aufgespalten werden und sich die Bandlücke verringert.
Die Korrektur der Spektralfunktion spiegelt sich natürlich in allen anderen Werten wieder. Um den Einfluss der Variation des Hüpfens zu verdeutlichen sehen wir uns die Bandlücke an. In Abbildung 2.8 wurde die Bandlücke für verschiedene Kombinationen der Variationsparameter gezeigt, wobei das chemische Potential wegen der Notwendigkeit für die thermodynamische Konsistenz immer variiert wurde. Die Bandlücke ist zunächst die des wechselwirkungsfreien Bandisolators in der topologischen Isolatorphase. Mit zunehmender Wechselwirkung wird die topologische Bandlücke immer kleiner, bis sie am Phasenübergang verschwindet und danach als normale Mottisolator Bandlücke wieder aufgeht. Der Punkt der geschlossenen Bandlücke beschreibt also den Phasenübergang zwischen topologischer und Mott-Isolator Phase. Wir finden, dass die Variation des Spin-Bahn-Kopplungstermes nur einen minimalen Einfluss auf die Bandstruktur und damit die Bandlücke hat, der Phasenübergang ist fast identisch mit dem ohne Variation aller Hüpf Parameter. Die Variation des einfachen Hüpftermes bringt allerdings eine deutliche Verbesserung der Lösung, der Phasenübergang wird hier zu größeren Wechselwirkungsstärken verschoben. Die gleichzeitige Variation des Hüpfens und des Spin-Bahn-Kopplungstermes bringt kaum eine weitere Veränderung, weshalb wir uns in den weiteren Berechnungen auf die Variation des normalen

Hüpftermes beschränken. Dass die Variation des Hüpfens eine Verbesserung der Lösung bringt lässt sich dadurch erklären, dass zunächst auf dem Cluster das Hüpfen des Systems als Parameter angenommen wird. Darauf wird jetzt die Wechselwirkung angewandt, was zu einer Renormierung der Bandstruktur führt. Je nach Form und Größe des Clusters fällt die Renormierung unterschiedlich aus. Die Variation des Hüpfens kann jetzt dieser Renormierung entgegenwirken, sodass man wieder näher an der Systembandstruktur ist. Wenn man sich z.B. die Phasenübergänge zur antiferromagnetischen Isolatorphase in Graphen ohne Spin-Bahn-Kopplung ansieht, findet man ohne eine Variation des Hüpfens kritische Werte für die Wechselwirkungsstärke von $U_c = 3.8, 1.6, 2.5$ für die sechs-, acht- und zehn-Platz Cluster. Mit zusätzlicher Variation des Hüpfens verschieben sich die Phasenübergänge zu kritischen Werten von $U_c = 3.7, 2.3, 2.9$ für die selben Cluster. Man sieht also, dass die Streuung der kritischen Werte deutlich reduziert wurde, die Clusterabhängigkeit durch die Variation des Hüpfens ein bisschen ausgeglichen wurde. Man kann sagen, dass die zusätzliche Variation des Hüpfens zu einer Verbesserung der Testselbstenergie des Referenzsystems führen kann, dies aber von Fall zu Fall untersucht werden muss. In Abbildung 2.9 wird

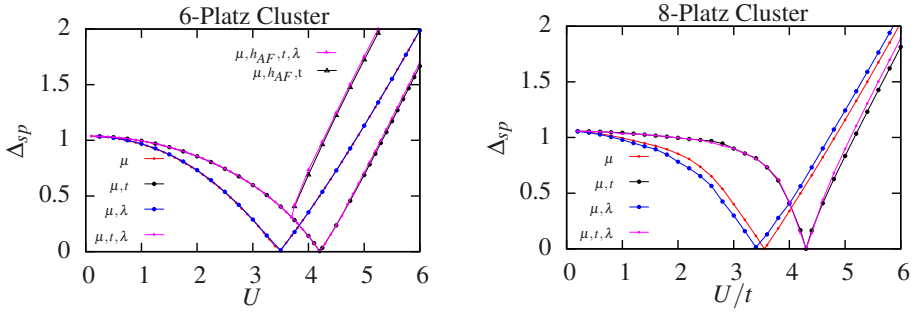


Abbildung 2.8: Bandlücke im Einteilchenspektrum als Funktion der Wechselwirkung U für Graphen mit intrinsischer Spin-Bahn-Kopplung $\lambda = 0.1$. Verschiedene Kombinationen der Variationsparameter wurden getestet.

das Phasendiagramm des Kane-Mele-Hubbard-Modells auf dem zehn-Platz Cluster gezeigt. In (a) wurden lediglich das chemische Potential ε und das antiferromagnetische Weissfeld h_{xy} variiert. Die Phasengrenze zwischen TI und XY-AFM zeigt für große Spin-Bahn-Kopplung ein abfallen des kritischen Wertes der Wechselwirkungsstärke. Dieses Abfallen der Phasengrenze ist nicht intuitiv nachvollziehbar. Betrachtet man das Phasendiagramm unter Berücksichtigung der Variation der Hüpfamplitude, so findet man, dass die Phasengrenze nicht mehr abfällt, wie man in Abbildung 2.9(b) ablesen kann. Das gleiche Phänomen lässt sich auch auf dem sechs- und zehn-Platz Cluster beobachten. Die Variation der Hüpfamplitude korrigiert einerseits eine extreme Clusterabhängigkeit des Systems was in der reduzierten Streuung der kritischen Werte für die Wechselwirkungsstärke beim magnetischen

Phasenübergang in Graphen zu sehen ist. Außerdem wird, durch die Korrektur der stärke des Hüpfens, die Bandstruktur renormiert und der Verlauf des Phasenüberganges realistischer.

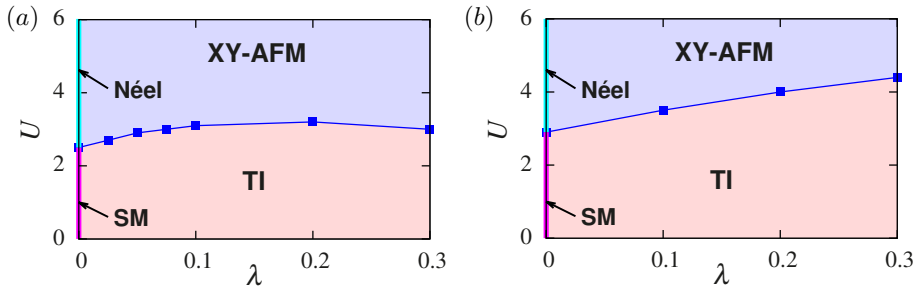


Abbildung 2.9: Phasendiagramm des Kane-Mele-Hubbard-Modells berechnet auf dem zehn-Platz Cluster. (a) Variation des chemischen Potentials ε und des antiferromagnetischen Weissfeldes h_{xy}. Der Verlauf der Phasengrenze zur XY-AFM Phase fällt für große Spin-Bahn-Kopplung wieder ab. (b) Variation des chemischen Potentials ϵ und des antiferromagnetischen Weissfeldes h_{xy} und zusätzlich die Variation der Hüpfamplitude. Die Phasengrenze zum XY-AFM nimmt monoton zu für steigende SO, im Gegensatz zum Abfallen in (a).

Kapitel 3

Das Wechselspiel von Frustration und elektronischer Korrelation im Dreiecksgitter

Stark korrelierte Systeme mit dreieckigen Gittersymmetrien haben in den letzten Jahren wieder größeres Interesse auf sich gezogen. Dieses Interesse kommt unter anderem daher, dass diese Systeme extrem reich an verschiedenen und vor allem exotischen Phasen sind. So wurde z.B., in einer Klasse von organischen Halbleitersystemen $\kappa-(\mathrm{BEDT-TTF})_2\mathrm{X}$ [10, 11], Antiferromagnetismus, unkonventionale möglicherweise topologische Supraleitung und der Metall zu Isolator Übergang gefunden. Auch spirale magnetische Ordnungen sind für viele dieser Verbindungen möglich. Auch die Untersuchung der magnetischen Ordnung isolierender Phasen in $\sqrt{3}$-Adatom Strukturen wie Sn auf Si(111) [3,31] ist erst durch neuste Prozessierungsmethoden möglich.
Ein mit großer Spannung untersuchtes Feld ist ein ungeordneter Zustand bei $T = 0$, der möglicherweise durch die Frustration zusammen mit der Korrelation der Elektronen durch die Wechselwirkung erzeugt wird [44–46]. Dieser wird von manchen Methoden sogar für das isotrope Dreiecksgitter vorhergesagt [47], andere vermuten dass diese exotische Phase nur durch Anisotropie erzeugt werden kann.
Dieser Reichtum an Phasen kommt aus einer Kombination von niedriger Dimensionalität, kleinem Spin, geometrischer Frustration und räumlicher Anisotropie, wobei auch Quantenfluktuationen eine sehr große Rolle spielen. Den Einfluss der Quantenfluktuationen kann man z.B. durch das Anlegen eines Magnetfeldes sichtbar machen. So findet man für endliche Temperaturen bereits in einer klassischen Rechnung ein Magnetisierungsplateau [48], bei $m = \frac{1}{3}M_{sat}$, in dem eine kollineare Phase existiert, die in der klassischen Rechnung von thermischen Fluktuationen bevorzugt wird. In einer quantenmechanischen Rechnung findet man bereits für $T = 0$ ein Magnetisie-

rungsplateau mit einer kollinearen Phase, das von den quantenmechanischen Fluktuationen bevorzugt wird und sich auch bei $m = \frac{1}{3}M_{sat}$ befindet [49,50]. Quantenfluktuationen können auch noch zu weiteren fraktionalen Magnetisierungsplateaus führen [51].
Eine klassische Betrachtung des feldfreien anisotropen Dreiecksgitters liefert einen Phasenübergang von der AFM Ordnung des Quadratgitters zur 120°-Néel Ordnung des Dreiecksgitters bei $J'/J = 0.5$. Unter Einbeziehung von quantenmechanischen Fluktuationen verschiebt sich dieser Phasenübergang deutlich hin zum Dreiecksgitter, das heißt die kollineare Phase des AFM wird von den Fluktuationen favorisiert.
Trotz all dieser Arbeiten sind Systeme mit dreieckiger Gittersymmetrie noch immer nicht vollständig verstanden. Das liegt zum Teil daran, dass das Gitter stark frustriert ist, wie in Abschnitt 1.2 beschrieben, und deshalb für alle Quanten Monte-Carlo basierten Methoden nur schwer zugänglich ist, da das bekannte Vorzeichenproblem auftritt. Mit Hilfe der VCA ist es mir möglich, auch dieses stark frustrierte System zu untersuchen und damit einen Beitrag zum Verständnis stark korrelierter elektronischer Systeme auf dreieckigen Gittersystemen zu liefern.
So untersuche ich zunächst den Einfluss eines extern angelegten Magnetfeldes auf die magnetische Ordnung des isotropen Dreiecksgitters, wobei ich ein Magnetisierungsplateau finde. Ich finde einen Zusammenhang aus der Größe des Magnetisierungsplateaus mit der Wechselwirkungsstärke, wodurch eine Kalibrierung des theoretischen Modells durch das Experiment ermöglicht wird. Dann analysiere ich das anisotrope Dreiecksgitter im Übergang zum Quadratgitter unter dem Einfluss der Hubbard-Wechselwirkung. Ich finde eine paramagnetische Metallphase, die antiferromagnetische Isolatorphase für das Quadratgitter und eine 120°-Néel Isolatorphase des isotropen Dreiecksgitters. Von diesen Phasen umschlossen besteht ein Bereich, in dem eine nichtmagnetische Isolatorphase (engl. *non magnetic insulator* NMI) besteht. Ich beschreibe hier in der nichtmagnetischen Isolatorphase den Einfluss der Anisotropie auf eine mögliche Spinflüssigkeit.

3.1 Externes Magnetfeld im frustrierten Quanten-Magneten

Wie bereits in der Einleitung erwähnt, untersuchen wir mit dem Dreiecksgitter ein System, das stark frustriert ist und in dem quantenmechanische Fluktuationen eine besonders große Rolle spielen. Diese bringen einige Effekte zum Vorschein, die eine klassische Rechnung nicht zeigt. Die 120°-Néel Ordnung erhält man bereits aus einer klassischen Rechnung durch Minimierung der Grundzustandsenergie dreier Spins auf drei benachbarten Gitterplätzen. Legt man jetzt in der Ebene der Spinkonfigurationen ein externes Magnetfeld an, so ist es einleuchtend, dass die Spins sich drehen und

mit zunehmender Feldstärke einer Sättigung in der ferromagnetischen Ordnung entgegenstreben. Die Konfigurationen der Spins wurde in Abbildung 3.1 Schematisch dargestellt. Die klassische Rechnung für das Dreiecksgitter im

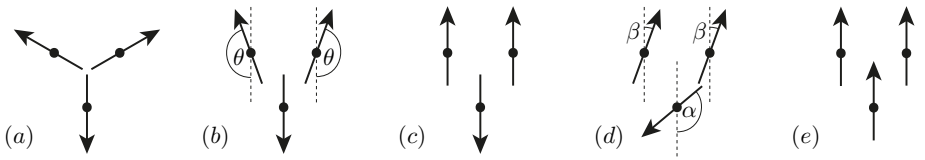


Abbildung 3.1: Konfigurationen der Spins von Elektronen auf drei benachbarten Gitterplätzen des Dreiecksgitter. Folgende Konfigurationen werden bei zunehmender Feldstärke eines externen Magnetfeldes durchlaufen. (*a*) 120°-Néel im feldfreien Fall. Für die folgenden Ordnungen werden entsprechende Abkürzungen eingeführt (*b*) Y: Durch den Winkel $\theta = [120° : 180°]$ wird der Übergang zwischen den beiden angrenzenden Phasen beschrieben. (*c*) UUD (*d*) V: die beiden Winkel α und β müssen unabhängig voneinander variiert werden. (*e*) Ferromagnetische Ordnung wenn die Sättigungsmagnetisierung erreicht ist.

externen Magnetfeld, z.B. von Gvozdikova, Melcy und Zhitomirsky [52] zeigt einen kontinuierlichen Übergang der Konfigurationen, die in Abbildung 3.1 dargestellt sind, von (*a*) dem feldfreien System bis (*e*) oberhalb einer Sättigungsmagnetisierung. Im klassischen System ist die UUD-Phase, in der zwei Spins ↑ und einer ↓ gerichtet sind, allerdings nicht als eigene Phase stabilisiert, sondern wird nur beim Übergang von Y- nach V-Phase durchlaufen, die Magnetisierung nimmt kontinuierlich zu. Auch hier finden wir durch die Einbeziehung der quantenmechanischen Fluktuationen, dass die kollineare Phase an Gewicht gewinnt, oder hier gerade erst als eigenständige Phase ausgebildet wird, da durch die Fluktuationen kollineare Phasen bevorzugt werden. Das heißt, es tritt explizit eine UUD-Phase auf, bei der zwei der drei Spins in Richtung des Magnetfeldes ausgerichtet sind, während einer entgegensteht. Dadurch ist es im quantenmechanischen System besser möglich virtuelle Hüpfprozesse durchzuführen, wie in der Beschreibung des Hubbard-Modells in Abbildung 1.1 gezeigt, was den Fluktuationen entspricht. In der UUD-Phase hat das System eine mittlere Magnetisierung $\langle m \rangle = 1/3 M_{sat}$ exakt ein Drittel der Sättigungsmagnetisierung M_{sat}, die stabil gehalten wird. Erst ab einer deutlich höheren Magnetfeldstärke nimmt die Magnetisierung wieder zu. Man spricht von einem Magnetisierungsplateau, was z.B. Tay und Motrunich mit ED [53] gezeigt haben. In dieser Arbeit wurde das Phasendiagramm des Heisenberg-Modells vorgestellt, in dem die Phasen wie in Abbildung 3.1 gefunden werden und mit steigender Magnetfeldstärke durchlaufen werden.

Im Folgenden wird nun der Einfluss eines externen Magnetfeldes auf das Hubbard-Modell des Dreiecksgitters untersucht. Dabei werden wir besonderes Augenmerk auf das Magnetisierungsplateau und den Verlauf der Magnetisierung bis zum Plateau legen, da hier eine deutliche Abhängigkeit von der Wechselwirkungsstärke festzustellen ist. Ich werde also zunächst die Daten

präsentieren, die die VCA mit externem Magnetfeld liefert und im Folgenden diskutieren wie man aus dem Experiment die Stärke der Wechselwirkung ablesen kann.

3.1.1 Magnetisierungsplateau durch Konkurrenz von planarer und kollinearer Ordnung

Wir legen im Hubbard-Modell des isotropen Dreiecksgitters ein externes Magnetfeld an und untersuchen dann die magnetische Ordnung in Abhängigkeit der Feldstärke und der Wechselwirkungsstärke. Wir untersuchen folgenden Systemhamiltonian

$$\mathscr{H}_{Magnetfeld} = \mathscr{H}_{Hubbard} + B\sum_i (c^\dagger_{i\uparrow}c_{i\uparrow} - c^\dagger_{i\downarrow}c_{i\downarrow}) \tag{3.1}$$

B ist hier die Stärke des externen Magnetfeldes, das in der Ebene der planaren magnetischen Ordnung angelegt wird. Die Weissfelder werden analog zu dem Weissfeld für die 120°-Néel Ordnung erzeugt, mit den variablen Winkel, wie sie in Abbildung 3.1 dargestellt sind. Diese Winkel gehen als weitere Freiheitsgrade in die Variation der VCA ein. In Abbildung 3.3 ist die Magnetisierung des Systems bei einem angelegten Magnetfeld dargestellt, wobei als Referenzsystem entkoppelte drei-Platz Cluster dienen, siehe Abbildung 3.2. Alle Kurven starten ohne angelegtes Feld in der 120°-Néel Ordnung mit

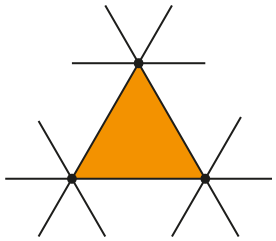


Abbildung 3.2: Drei-Platz Cluster ist das einfachste Cluster für das Dreiecksgitter. Es ist das einzige Cluster in Form eines Dreiecks, das das Dreiecksgitter ohne Hilfskonstruktion vollständig ausfüllen kann.

$\langle m_{120}\rangle \neq 0$, aber ohne Magnetisierung $\langle m_z\rangle = 0$ in z-Richtung. Wir finden zunächst einen linearen Anstieg der Magnetisierung mit der Magnetfeldstärke bis zum Magnetisierungsplateau bei $\langle m_z\rangle = 1/3M_{sat}$, wobei die Steigung abhängig von der Wechselwirkungsstärke U ist, worauf später noch eingegangen wird. Der untere Phasenübergang findet je nach Wechselwirkungsstärke zwischen $B_{c1}/J(U = 8t) \approx 0.65$ und $B_{c1}/J(U = 30t) = 1.2$ statt. Auf dem Plateau bleibt die Magnetisierung konstant bis sie weiter ansteigt bei $B_{c2}/J \simeq 1.8$. Während also die untere Phasengrenze stark von der Wechselwirkungsstärke abhängt, ist die obere Grenze des Magnetisierungsplateaus scheinbar universell für alle Wechselwirkungen. Daraus lässt sich der Schluss ziehen, dass die niederenergetischen Prozesse von den Fluktuationen, die

durch kleinere Wechselwirkungsstärke zunehmen, sehr viel stärker profitieren. Die hochenergetischen Prozesse, die bei starkem Magnetfeld auftreten, sind dagegen relativ unabhängig von der Wechselwirkungsstärke und deshalb findet der Übergang von der UUD- zur V-Phase bei sehr einheitlichem Magnetfeld statt.

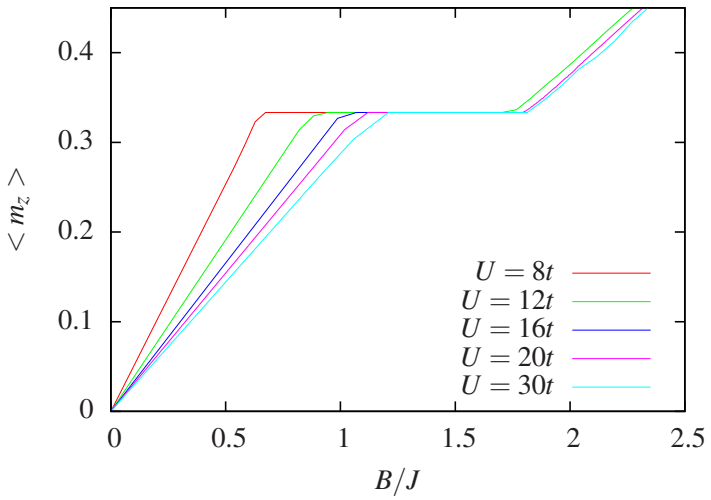


Abbildung 3.3: Magnetisierung des isotropen Dreiecksgitters für verschiedene Wechselwirkungsstärken. Die Stärke des externen Magnetfeldes wurde durch die Kopplungskonstante $J = \frac{4}{U} - \frac{28}{U^3}$ normiert B/J. Zunächst steigt die Magnetisierung linear an, wobei die Spinordnung von der 120° über die Y zur UUD-Ordnung übergeht. Im gesamten Plateau befindet sich das System in der kollinearen UUD Ordnung. Danach steigt die Magnetisierung weiter an, die Spinordnung geht durch die V-Ordnung bis zur vollständigen Sättigung $\langle m_z \rangle = 1$ über, in der alle Spins gleichgerichtet sind.

3.1.2 Magnetische Suszeptibilität im Magnetfeld

Aus dem linearen Anstieg der Magnetisierungskurve lässt sich direkt die magnetische Suszeptibilität des Systems ohne und mit kleinem Magnetfeld ablesen, welche gegeben ist durch:

$$\chi = \frac{\delta \langle m_z \rangle}{\delta B_z} \tag{3.2}$$

Aus der Abhängigkeit der Suszeptibilität von der Wechselwirkungsstärke, die z.B. mit ^{1}H-NMR [54] gemessen werden kann, ist es jetzt möglich Rückschlüsse auf die Stärke der Wechselwirkung des untersuchten Systems zu ziehen. Für kleine Wechselwirkungsstärke ($U = 8$) steigt die Magnetisierungskurve $m(B)$ als Funktion des Magnetfeldes B schwächer an, d.h. die Suszeptibilität ist hier die kleinste $\chi(U = 8) = 1.14$, und nimmt für größere Wechselwirkung zu $\chi(U = 30) = 2.18$. Die genaue Abhängigkeit der Suszeptibilität von der Wechselwirkungsstärke ist in Abbildung 3.4 abzulesen.

Ich habe in den Rechnungen gezeigt, dass die quantenmechanischen Fluktua-

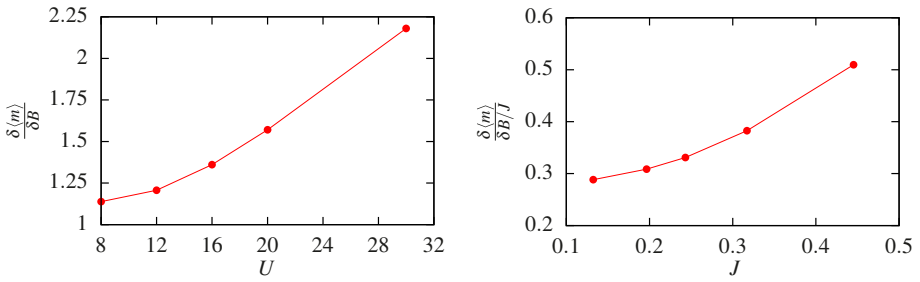


Abbildung 3.4: Anstieg der Magnetisierung $\frac{\delta\langle m\rangle}{\delta B}$ als Funktion der Wechselwirkungsstärke U bei kleinem angelegtem externem Magnetfeld in der Ebene der planaren Ordnung.

tionen eine kollineare Phase gegenüber der planaren Phase bevorzugen und eine Phase bilden, die sehr stabil ist gegen das angelegte Magnetfeld. Außerdem kann anhand der magnetischen Suszeptibilität, die aus dem Anstieg der Magnetisierungskurve ablesbar ist, auf die Stärke der Wechselwirkung zurück geschlossen werden. Dies ermöglicht eine Kalibrierung theoretischer Methoden durch Experimente.

3.2 Einfluss der räumlichen Anisotropie auf die Spinflüssigkeitsphase in stark korrelierten organischen Ladungstransfersalzen

Die chemisch reinen Einkristalle der organischen Ladungstransfersalze haben in letzter Zeit großes Interesse auf sich gezogen. Dadurch wurden einige auffällige Phänomene und auftretende Phasen beobachtet, wie z.B. eine mögliche Spinflüssigkeit sowie unkonventionale möglicherweise topologische Supraleitung. Eine Besonderheit dieser organischen Ladungstransfersalze liegt darin, dass sie eigentlich eine Materialklasse bilden, aber sehr unterschiedliche Eigenschaften besitzen. Es wurde z.B. der Übergang vom Metall zum Isolator beider Verbindungen als erster Ordnung eingestuft, allerdings mit sehr verschiedenen kritischen Exponenten, die nicht in eine Universalitätsklasse fallen [55]. κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu[N(CN)$_2$]Cl und κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu$_2$(CN)$_3$ sind zwei prototypische Beispiele, die sehr viele Gemeinsamkeiten aber auch klare Unterschiede aufweisen. Sie werden im Folgenden als κ-Cl und κ-CN bezeichnet. Fermiflüssigkeit, Mott-Isolator und deren beider Übergang wurden experimentell untersucht und bei beiden gleichermaßen beobachtet [14, 15]. Jedoch weisen die beiden unterschiedliches magnetisches Verhalten auf. κ-Cl zeigt bei niedrigen Temperaturen langreichweitige magnetische Ordnung [12, 56], was in starkem Gegensatz zum Spinflüssigkeitsverhalten von κ-CN steht, welches mit der Myon Spin Relaxations Methode [57] und mit ^{1}H-NMR Absorptionsspektroskopie [12] gemessen wurde. Es konnten in

der Bulk Spinsuszeptibilität von κ-CN keine Hinweise auf eine langreichweitige antiferromagnetische Ordnung gefunden werden. Diese Messungen gehen bis zu signifikant niedrigeren Temperaturen als vergleichsweise die Heisenberg Austauschkopplung, die mit Hilfe der Hochtemperatur Reihenentwicklung theoretisch bestimmt wurde. Diese Ergebnisse zeigen einerseits die Ähnlichkeit im Ladungssektor, aber andererseits auch die Unterschiede der Freiheitsgrade im Spinsektor, was in einigen theoretischen Arbeiten untersucht wurde [58–61]. In diesen Arbeiten wurden die Ladungs- und Spinfreiheitsgrade in einem effektiven Modell getrennt, was die Untersuchung des Verhaltens der Spinone in der Mottisolatorphase erlaubt. Dennoch kann man unterschiedliche Schlüsse ziehen. Einerseits liefern Spin-1/2 Spinone in einer $U(1)$ Eichfeldtheorie mit Kopplung zur Spinon Fermifläche einen Beitrag zur thermischen Leitfähigkeit [58], andererseits kommt in einer $\mathbb{Z}_2$ Spinflüssigkeitstheorie der Beitrag aus spinlosen Visonen [59].
Auf der experimentellen Seite sind die thermodynamischen Untersuchungen bisher auch noch nicht endgültig, so führen z.B. die Experimente zur spezifischen Wärme [62] und der thermischen Leitfähigkeit [63] zu unterschiedlichen Schlüssen in Hinsicht auf den Ursprung der fermionischen Anregungen in κ-CN. Offen ist auch noch, ob der Spinflüssigkeitszustand, den man in dieser Verbindung gefunden hat, eine vollständige Bandlücke besitzt oder nicht [64, 65].
Ein offensichtlicher Unterschied dieser beiden Verbindungen liegt in der Stärke der Anisotropie des darunterliegenden Kristallgitters und der chemischen Komponenten. Die Stärke der Anisotropie eines Materials erhält man aus *ab initio* Berechnungen [66–68] $t'/t = 0.44 \pm 0.05$ für κ-Cl und $t'/t = 0.83 \pm 0.08$ für κ-CN. Außerdem erhält man eine Abschätzung für die Wechselwirkungsstärke aus dem *tight binding* Modell, $U = 5.5$ für κ-Cl und $U = 7.3$ für κ-CN. Ich werde in diesem Abschnitt das Phasendiagramm in Abhängigkeit der Anisotropie und der Wechselwirkungsstärke zeigen, wobei ich eine metallische, die antiferromagnetische Isolator, die 120°-Néel sowie eine nichtmagnetische Isolatorphase identifiziere und im Phasenraum eingrenze. Die Lage der als Beispiel angeführten Verbindungen sind im Phasendiagramm in Abbildung 3.10 als Sterne markiert.
Da sich das Hubbard-Modell bereits für das isotrope Dreiecksgitter bewährt hat und man damit das Zusammenspiel von geometrischer Frustration und langreichweitiger elektronischer Korrelation untersuchen kann [47], werde ich hier einen Schritt weiter gehen und beziehe die Anisotropie des Gitters mit ein, um die Unterschiede dieser Materialien zu beschreiben.
Das Hubbard-Modell des anisotropen Dreiecksgitter ist dann gegeben durch folgenden Hamiltonian:

$$\mathscr{H}_{anisotrop} = -\sum_{<ij>,\sigma} t_{ij} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} + \mu \sum_{i\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{i\sigma} + U \sum_{i} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}, \tag{3.3}$$

mit $\langle ij \rangle$ den Positionen zweier benachbarter Plätze, $t_{ij} = t'$ für die vertikalen und horizontalen Hüpfen und $t_{ij} = t$ für die diagonalen Hüpfen wie in Abb. 3.6 gezeigt. Die Veränderung der Stärke der Anisotropie t'/t zwischen den Grenzwerten 0 und 1 liefert uns dann effektiv den Übergang der Geometrie vom Quadrat zum Dreiecksgitter.
Ich werde zunächst den magnetischen Übergang des AFI beschreiben, dann die Phasengrenzen des nichtmagnetischen Isolators untersuchen und zuletzt das gesamte Phasendiagramm zusammenfassen.

3.2.1 Der Magnetische Phasenübergang: vom Quadratgitter zum isotropen Dreiecksgitter

Ich werde in diesem Kapitel den magnetischen Phasenübergang vom Quadratgitter über das anisotrope Dreiecksgitter bis zum isotropen Dreiecksgitter untersuchen, um Aufschlüsse darüber zu gewinnen, welchen Einfluss die Anisotropie auf die magnetischen Eigenschaften der organischen Ladungstransfersalze hat. Startet man mit dem unfrustrierten Quadratgitter, kann man dieses kontinuierlich in ein Dreiecksgitter umwandeln, indem man ein Diagonalhüpfen t' einführt. Damit werden zwei geometrisch verschiedene Gitter beschrieben und ineinander überführt indem t'/t von 0, dem Quadratgitter, nach 1 läuft, dem isotropen Dreiecksgitter. Demnach erwarte ich eine Verbindung der bereits bekannten Ergebnisse für das Quadratgitter und das isotrope Dreiecksgitter, die über die Stärke der Anisotropie verbunden sind. Das Verhältnis t'/t beschreibt den Grad der Frustration des Systems, wie es bereits in Abschnitt 1.2 beschrieben wurde. Um die antiferromagnetische Ordnung des Quadratgitters (AF) zu untersuchen wurde folgendes Weissfeld eingeführt

$$\mathscr{H}_{AF} = h_{AF} \sum_i e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r_i}} \left(c^\dagger_{i\uparrow} c_{i\uparrow} - c^\dagger_{i\downarrow} c_{i\downarrow} \right) \tag{3.4}$$

wobei h_{AF} die Stärke des Weissfeldes angibt, $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ der Ordnungsvektor der Ordnung ist und $\mathbf{r_i}$ die Orte der Gitterplätze i angibt. Die Eigenschaften des halbgefüllten Hubbard-Modells auf dem Quadratgitter sind sehr gut bekannt, so erhält man durch das Nesting der Fermifläche einen Mott-Übergang für infinitesimale Wechselwirkung hin zu einer antiferromagnetisch geordneten Isolatorphase. Aus dem Heisenberg-Modell haben wir gelernt, dass die bevorzugte Ordnung des Dreiecksgitters bei sehr starker Wechselwirkung eine 120°-Néel Ordnung ausbildet. Diese wird in unserem Hubbard-Modell nun als Weissfeld implementiert:

$$\mathscr{H}_{120} = h_{120} \sum_i e^{i\mathbf{K}\mathbf{r_i}} \left(c^\dagger_{i\uparrow} c_{i\downarrow} - c^\dagger_{i\downarrow} c_{i\uparrow} \right) \tag{3.5}$$

hierbei ist wieder h_{120} die Stärke des Weissfeldes, die variiert wird um einen stationären Punkt zu finden, $\mathbf{K} = (\frac{2\pi}{3}, \frac{2\pi}{\sqrt{3}})$ ist der Ordnungsvektor dieser

Ordnung. Die verschiedenen magnetischen Ordnungen sowie die Gittersymmetrie stellen einige Anforderungen an die Wahl des Clusters. Beide magnetische Ordnungen passen auf das sechs-Platz Cluster und das Cluster bildet mit seiner dreieckigen Form die Symmetrie des Gitters am besten ab, weshalb wir uns für die kommenden Berechnungen und Diskussionen auf das Referenzsystem bestehend aus entkoppelten sechs-Platz Clustern beziehen. Um das Gitter vollständig auszufüllen ist es notwendig ein Supercluster aus zwei zueinander gespiegelten Clustern zu konstruieren, was in Abbildung 3.5 gezeigt ist.

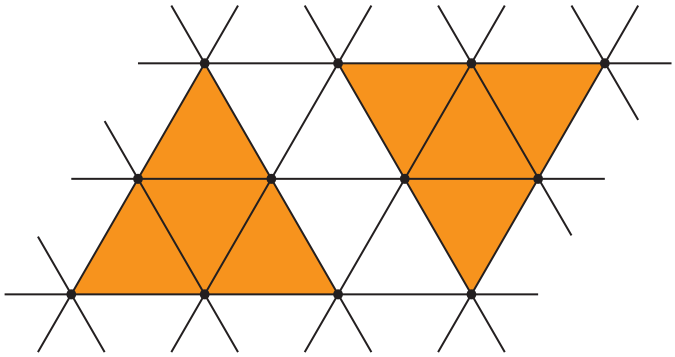


Abbildung 3.5: Supercluster bestehend aus zwei sechs-Platz Clustern auf dem Dreiecksgitter. Das sechs-Platz Cluster benötigt die Spiegelkonstruktion um das Gitter vollständig auszufüllen.

Das isotrope Dreiecksgitter verhält sich im Vergleich zum Quadratgitter grundlegend anders: Die nichtwechselwirkende Fermifläche bildet einen Kreis, wie in Abbildung 1.3 (rechts) gezeigt, und besitzt daher keine Nestingeigenschaften, die zu einer magnetischen Ordnung führen könnten. Die Frustration führt dazu, dass das Hubbard-Modell des Dreiecksgitters zunächst eine metallische Phase stabilisiert. Für sehr starke Wechselwirkung bildet sich genau wie in der klassischen Rechnung, eine 120°-Néel Ordnung aus, die auch im Heisenberg-Modell gefunden wird.
Der Übergang vom Dreiecksgitter zu schwach gekoppelten eindimensionalen Ketten $t'/t > 1.1$ wurde nicht berechnet, da dieser Bereich von Phasen mit starker Inkommensurabilität dominiert wird, welche mit der VCA nicht handhabbar sind. Dennoch möchte ich an dieser Stelle erwähnen, dass auch hier interessante Phasen auftreten, wie z.B. möglicherweise auch eine Spinflüssigkeitsphase, inkommensurable spirale magnetische Ordnungen und einige mehr [69, 70].
Im Grenzfall starker Korrelationen ist das Hubbard-Modell aus Gleichung (3.3) äquivalent dem Heisenberg-Modell und es bildet sich eine kollineare antiferromagnetische Ordnung mit dem Ordnungsvektor $Q = (\pi, \pi)$ bei $t'/t = 0$ [71] auf dem Quadratgitter aus. Auf dem Dreiecksgitter (bei $t'/t = 1$) bildet sich, in dem Grenzfall sehr starker Wechselwirkung, eine planare Néel Ordnung

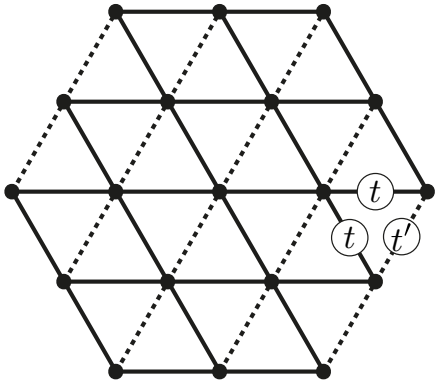


Abbildung 3.6: Anisotropes Dreiecksgitter: das diagonale Hüpfen t' interpoliert zwischen den Grenzfällen $t' = 0$ dem Quadratgitter und dem isotropen Dreiecksgitter $t' = t$

mit dem Ordnungsvektor $K = (\frac{2\pi}{3}, \frac{2\pi}{\sqrt{3}})$ aus, bei der sich die Spins in einer Ebene jeweils mit einem Winkel von 120° zueinander anordnen [72–74]. Der Übergang zwischen den beiden magnetischen Phasen bei starker Wechselwirkung wird von uns [1] mit der *dual fermion* Methode beschrieben, wobei diese in der Lage ist inkommensurable Phasen wiederzugeben. Dies wurde z.B. von Reuther *et al.* [75] mit PIRG bestätigt. Man findet, dass in einem Bereich $t'/t \sim 0.6\breve{}0.8$, ein Übergang stattfindet, weg von der AFI Ordnung des Quadratgitters. Zunächst verbreitert sich der Peak der Instabilität an (π, π) bis er sich aufteilt in zwei Peaks, welche dann zum K-Punkt wandern, dem Ordnungsvektor der 120°-Néel Ordnung, wie in Abbildung 3.7 zu sehen ist. Dieser Übergang hat also keine scharfe Phasengrenze sondern ist viel mehr ein kontinuierlicher Übergang durch inkommensurable magnetische Ordnungen und deshalb als zweiter Ordnung zu klassifizieren. Wie im Abschnitt 2.3 beschrieben, werden in der VCA möglichst viele vorgeschlagene und vermutete Phasen getestet, hier die AFI und die 120°-Néel Ordnung, und deren großkanonisches Potential berechnet. Dann werden die Energien der beiden kommensurablen Phasen verglichen, wie in Abbildung 3.8 gezeigt ist, dabei befindet sich das System in dem Zustand mit der niedrigsten Energie, wodurch sich beim überschneiden der beiden Kurven ein Phasenübergang ergibt. Eine Veränderung der Stärke der Anisotropie, d.h. eine Veränderung des Wertes t'/t führt zu einem Phasenübergang zwischen diesen beiden magnetisch geordneten Phasen. Der Néel-AFM Zustand ist überaschenderweise relativ stabil gegenüber geometrischer Frustration und man benötigt Werte von $t'/t > 0.89$ um die kollineare Antiferromagnetische Ordnung zu stören und die planare 120°-Néel Ordnung aufzubauen. Hierbei ist klar die Tendenz quantenmechanischer Systeme zu erkennen, dass kollineare Ordnungen bevorzugt werden, da in einer klassischen Rechnung ohne quantenmechanische Fluktuationen der Phasenübergang bei $J'/J = 0.5$ stattfindet was in etwa einem Wert von $t'/t = 0.7071$ entspricht.

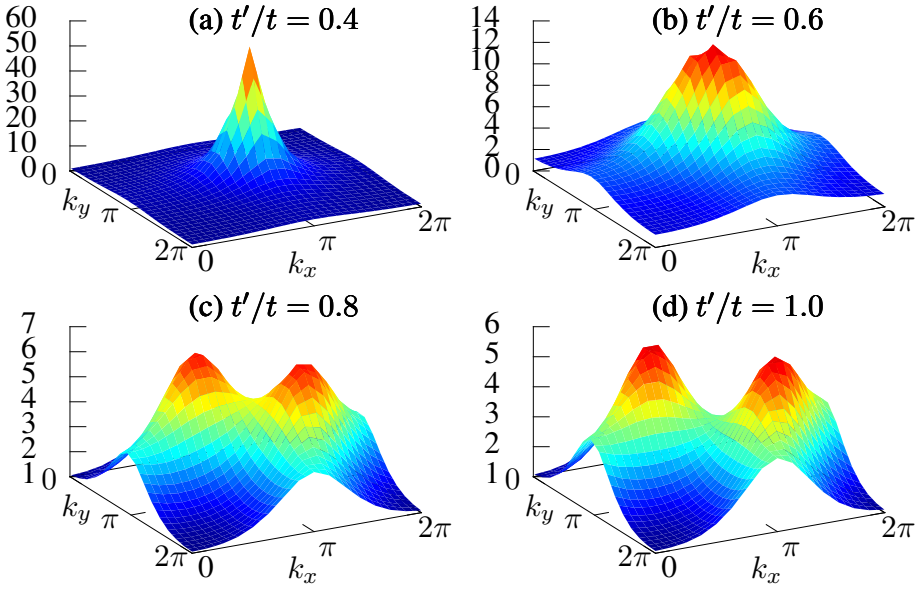


Abbildung 3.7: Die Spinsuszeptibilität $\chi_Q(i\Omega_m = 0)$, berechnet mit der *dual fermion* Methode, für $T/t \sim 0.286$ und $U = 9$ mit zunehmender Stärke der Anisotropie von (a) $t'/t = 0$ dem Quadratgitter bis (d) $t'/t = 1$ dem isotropen Dreiecksgitter. Die Temperatur wurde niedrig genug gewählt, sodass alle Suszeptibilitäten endlich bleiben. Eine Divergenz in $\chi_Q(i\Omega_m = 0)$ weist auf die Entwicklung einer magnetischen Ordnung mit dem entsprechenden Wellenvektor $\mathbf{Q}$ hin

Der Übergang von Néel-AFM zur 120°-Néel Ordnung ist nahezu unabhän-

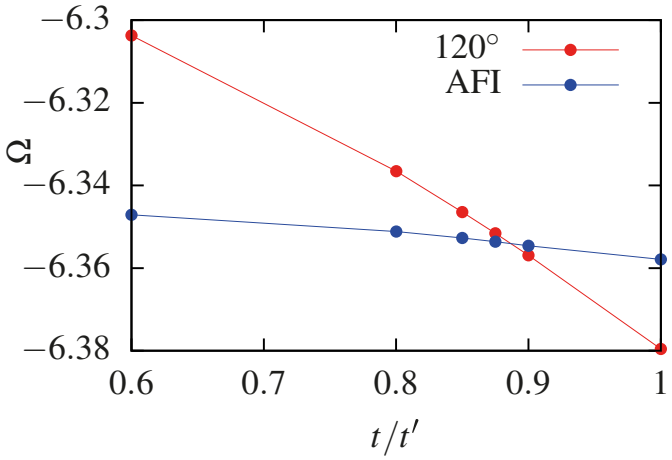


Abbildung 3.8: Die Phasengrenze der antiferromagnetischen Isolatorphase des Quadratgitters mit Ordnungsvektor (π, π) wird darüber bestimmt, in welcher Phase das großkanonische Potential die geringste Energie hat. Hier wird exemplarisch der Übergang zur 120°-Néel Isolatorphase gezeigt, dieser findet bei einem relativ konstanten Wert $t'/t \approx 0.89$ statt.

gig von der Wechselwirkungsstärke U für $U/t > 10$ oberhalb der NMI-Phase. Erst unterhalb einer Wechselwirkungsstärke von $U/t < 10$ wird der Einfluss der Ladungsträgerfluktuationen im Phasendiagramm sichtbar, und die Phasengrenze des Néel-AFM verlagert sich immer mehr in Richtung des Quadratgitters zu kleineren t'/t.
Für kleine Wechselwirkungsstärken spielt die Anisotropie eine deutlich größere Rolle. So stabilisiert sich z.B. die metallische Phase im gesamten Bereich von t'/t. Auf dem Quadratgitter ist die metallische Phase nur im wechselwirkungsfreien Fall gegeben. Durch das Fermiflächen Nesting ist der Grundzustand bereits für beliebig kleine Wechselwirkungsstärken antiferromagnetisch geordnet, wobei der Nestingvektor genau dem magnetischen Ordnungsvektor entspricht. Durch diese reduzierte Symmetrie öffnet sich eine Lücke im Ladungskanal des Quadratgitters. Entlang der Linie $t'/t = 0$ finden wir einen antiferromagnetischen Isolator, bis zu sehr kleiner Wechselwirkungsstärke $U = 0.3$ und nur für sehr kleine $U < 0.3$ ist das System metallisch. Bereits eine kleine Anisotropie verändert die Fermifläche und hebt damit das perfekte Nesting des Quadratgitters auf was zu einem Überleben der metallischen Phase für $U > 0$ führt. Mit zunehmender Anisotropie t'/t und der damit verbundenen Frustration wird der metallische Zustand stabilisiert und reicht zu immer größeren Werten der Wechselwirkungsstärke U/t.
Im Bereich kleiner Anisotropie $t'/t < 0.7$ ist der Metall Isolator Übergang (MIT) getrieben durch die Ausbildung der magnetischen Ordnung und die Phasengrenze zwischen Metall und Néel-AFM ist gleichzeitig der Phasenübergang zwischen Metall und Isolator. Dagegen verändert sich der Metall-

Isolator Übergang mit zunehmender Stärke der Anisotropie komplett. Der Metall-Isolator Übergang ist in den beiden geometrisch sehr verschiedenen Systemen von unterschiedlicher Natur. Während im Quadratgitter der Übergang durch das Fermiflächennesting und die damit verbundene antiferromagnetische Ordnung der Spins induziert wird und deshalb schon bei beliebig kleiner Wechselwirkungsstärke auftritt, findet im Dreiecksgitter der Phasenübergang nur durch die Freiheitsgrade im Ladungskanal statt, wie im folgenden Abschnitt weiter erläutert wird.
Die Néel-AFM Phase ist für kleine Wechselwirkungsstärken nur im Quadratgitter oder bei sehr kleiner Anisotropie vorhanden. Sie erstreckt sich aber für $t'/t = 0$ über alle Wechselwirkungsstärken. Mit steigender Wechselwirkung kann sich die Néel-AFM auch bei immer größerer Anisotropie des Gitters stabilisieren und eine Bandlücke induzieren. Für große Wechselwirkungsstärken $U/t > 10$ erstreckt sich die Néel-AFM Phase bis zu einem konstanten Wert der Anisotropie von $t'/t \approx 0.89$ wo ein Übergang zur 120°-Néel Ordnung stattfindet.
Korrelation und Frustration konkurrieren im anisotropen Dreiecksgitter, was sich direkt im Phasenübergang vom Metall zum AFM Isolator wiederspiegelt. Hierbei dominiert im Metall die Frustration, während im AFM Isolator die Korrelationen durch die Wechselwirkung dominieren und dadurch die Phasengrenze bestimmt wird.

3.2.2 Spinflüssigkeit im frustrierten Gitter: das Phasendiagramm

Die Grenzfälle des isotropen Dreiecksgitters wurden bereits diskutiert, wobei man für den Bereich kleiner Wechselwirkung eine paramagnetisch metallische Phase findet und im Grenzfall großer Wechselwirkung, im Heisenberg-Modell oder auch nach klassischer Rechnung, die 120°-Néel Ordnung findet. Der Bereich mittlerer Wechselwirkungsstärken wirft aber nach wie vor die Frage auf, ob zwischen Metall und der magnetisch geordneten Phase eine nicht magnetische Isolatorphase existiert oder nicht. Diese wäre dann möglicherweise ein Kandidat für eine Spinflüssigkeit. Wir stimmen mit den Ergebnissen von Sénéchal und Sahebsara [47] überein und finden eine nichtmagnetische Isolatorphase zwischen $5.25 < U/t < 9.4$.
In Abbildung 3.9 zeigen wir zunächst den Übergang von einem paramagnetischen Metall zu einem paramagnetischen Isolator, wieder exemplarisch nur für das isotrope Dreiecksgitter $t'/t = 1$. Es wurden also keinerlei symmetriebrechende Weissfelder angelegt, wodurch mit ED zur Berechnung des Clusters keine Symmetriebrechung möglich ist. Mit dem Öffnen der Bandlücke finden wir einen Phasenübergang der komplett und nur induziert wird durch die Freiheitsgrade im Ladungskanal. Für einen Bereich von ca. $5.25 < U/t < 9.4$ öffnet das System eine Bandlücke ohne eine langreichweitige magnetische Ordnung auszubilden. In diesem Bereich konnten wir mit der VCA, durch

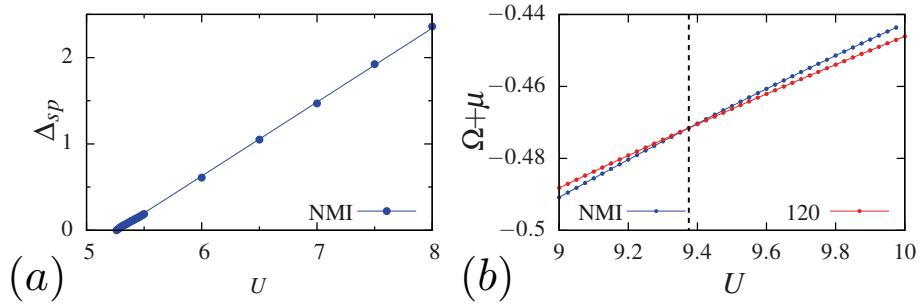


Abbildung 3.9: Die nichtmagnetische Isolator (NMI) Phase liegt zwischen dem Metall und der 120°-Néel Isolatorphase. Die Phasengrenzen werden, hier exemplarisch für den Punkt des isotropen Dreiecksgitters bei $t' = t$, bestimmt durch: (a) Die Bandlücke, wobei der Phasenübergang durch lineare Extrapolation zu $U = 5.25$ bestimmt wurde. (b) Freie Energie $\Omega + \mu$ als Funktion der Wechselwirkungsstärke für die beiden Phasen NMI und 120°-Néel. Die symmetriegebrochene Lösung wird bei $U = 9.4t$ energetisch günstiger, d.h. hier findet der Phasenübergang statt.

anlegen symmetriebrechender Weissfelder, keinerlei Ordnung finden. Man bezeichnet diesen Bereich deshalb als nicht magnetischer Isolator, der ein guter Kandidat für die extrem interessante Quanten-Spinflüssigkeit (engl. *quantum spin-liquid* QSL) ist. Der nichtmagnetische Isolator erstreckt sich von diesem Bereich der mittleren Wechselwirkungsstärke bis zu einer Anisotropie des Gitters von $t'/t > 0.7$, die genauen Phasenübergänge können in Abb. 3.10 abgelesen werden. Das Erscheinen dieser NMI-Phase bei mittlerer Wechselwirkungsstärke stimmt mit anderen theoretischen Untersuchungen überein [45–47].

Diese Ergebnisse der magnetischen und nicht magnetischen Isolatorphasen sowie das Metall sind in dem Phasendiagramm in Abbildung 3.10 gezeigt und stimmen sehr gut mit den Ergebnissen der variationellen Monte-Carlo Methode von Watanabe *et al.* [76, 77], Dayal *et al.* [78] sowie Yosioka *et al.* [79] mit der Pfadintegral Renormierungsgruppen (engl. *path-integral renormalization group* PIRG) Methode überein. Es zeigt das Phasendiagramm der Parameter: Anisotropie und Wechselwirkungsstärke. Wir finden also zwei magnetische Isolatorphasen die für große Wechselwirkungsstärken den jeweiligen Gittersymmetrien zugeordnet werden können: Néel-AFM Isolator mit Ordnungsvektor $Q = (\pi, \pi)$ für $U > 0$ und der 120°-Néel Isolator mit $K = (\frac{2\pi}{3}, \frac{2\pi}{\sqrt{3}})$ für $U/t > 10$. Für das Dreiecksgitter finden wir bei kleinen Wechselwirkungsstärken $U/t < 5$ eine paramagnetisch metallische Phase, die zum Quadratgitter nur für immer kleinere Wechselwirkung stabil bleibt. Eingeschlossen von diesen Phasen konnten wir eine nicht symmetriegebrochene Isolatorphase identifizieren und deren Phasengrenzen bestimmen. Sie erstreckt sich in einem Bereich mittlerer Wechselwirkungsstärke $5 < U/t < 9$ bis zu einer Anisotropie von $t/t' > 0.7$. Der Verlauf der Grenzen dieser NMI-Phase ist sehr interessant, da dieser Bereich ein möglicher Kandidat für eine

Quanten-Spinflüssigkeit ist. Mit den, von uns gezeigten, Phasengrenzen lässt sich ein grundlegender Unterschied der beiden Verbindungen κ-Cl und κ-CN verstehen. Durch die unterschiedliche Anisotropie ihres Gitters lässt sich $\kappa - Cl$ der AFM Isolatorphase zuordnen, während κ-CN in der NMI-Phase liegt, wie im Phasendiagramm in Abbildung 3.10 als Sterne veranschaulicht. Dies deckt sich mit den experimentellen Ergebnissen zur magnetischen Ordnung dieser Verbindungen.

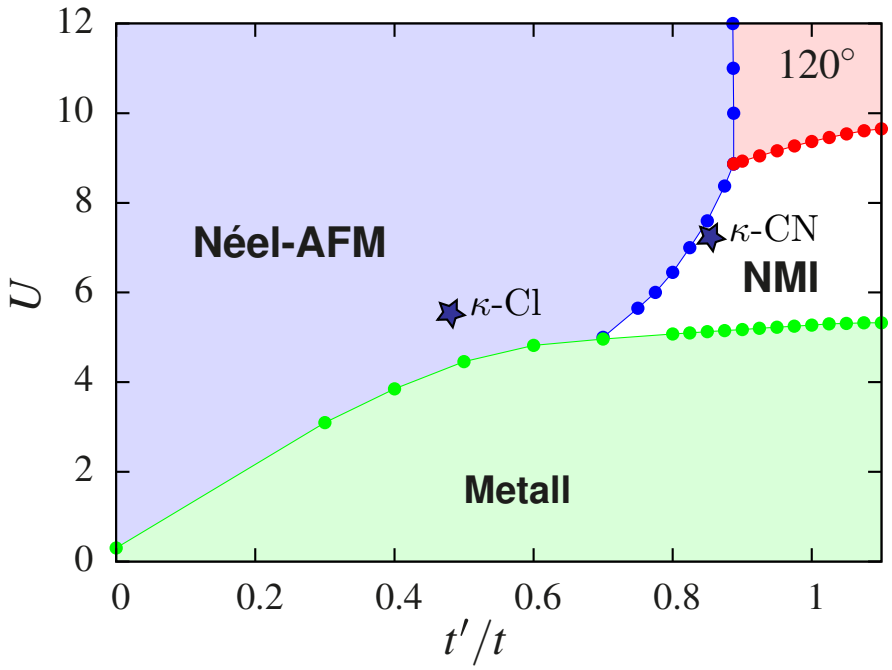


Abbildung 3.10: $T = 0$ Phasendiagramm für Anisotropie und Wechselwirkungsstärke das mit der VCA berechnet wurde. Veränderung der Stärke der Anisotropie t'/t von 0 nach 1 interpoliert die Systemgeometrie vom Quadrat- zum Dreiecksgitter. Wir haben vier Phasen identifiziert: ein paramagnetisches Metall, den Néel-AFM Isolator, den 120°-Néel Isolator sowie eine nicht magnetische Isolatorphase (NMI). Variiert wurden zur Bestimmung der stationären Punkte das chemische Potential ε und die magnetischen Weissfelder h_{AF} und h_{120}. Die Sterne markieren die Positionen der Verbindungen κCl und κCN im Phasendiagramm (Werte aus Referenz [66])

3.2.3 Optimierung der Selbstenergie durch die Variation der Hüpfamplitude

In den bisherigen Berechnungen wurde das chemische Potential variiert um die thermodynamische Konsistenz zu gewährleisten, sowie die antiferromagnetischen symmetriebrechenden Weissfelder h_{AF} und h_{120} um den Übergang in die magnetisch geordnete Phase zu bestimmen. Es hat sich herausgestellt [2], dass die Variation der Hüpfamplitude eine weitere Verbesserung der Selbstenergie mit sich bringt, was im weiteren für das isotrope Dreiecksgitter gezeigt wird. Die Energie des Grundzustandes wird durch die Variation des Hüpfens weiter erniedrigt, was in Abbildung 3.11 zu sehen ist. Jede Kurve dieser Abbildung weist zwei lokale Minima auf, die der metallischen $\delta t \sim -1$ und der isolierenden $\delta t \sim 0$ Lösung zugeordnet werden können. Der energetische Abstand der beiden Lösungen verringert sich mit steigender Wechselwirkung, bis die isolierende Lösung energetisch günstiger wird und der Phasenübergang bei $U \sim 7.5$ stattfindet. Mit weiter steigender Wechselwirkungsstärke wird der Einfluss der Variation des Hüpfens immer geringer. In der

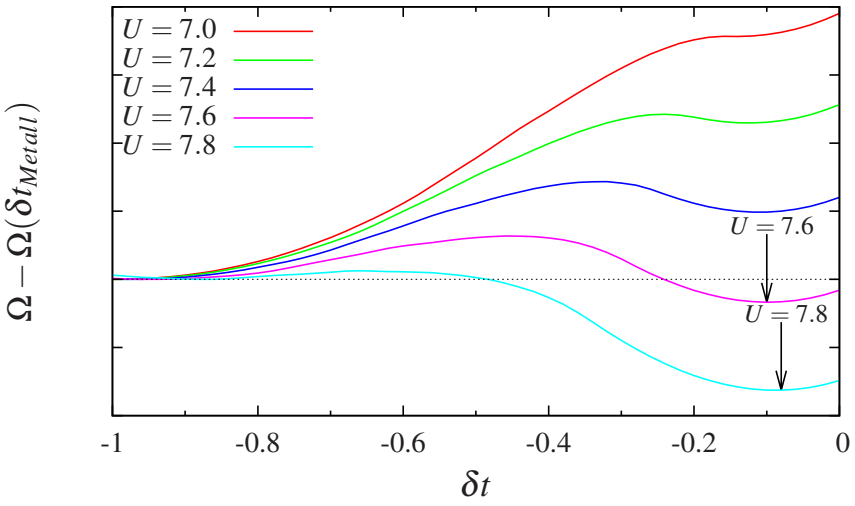


Abbildung 3.11: Das großkanonische Potential in Abhängigkeit der variierten Hüpfamplitude δt berechnet auf dem sechs-Platz Cluster. Um die Kurven zu verschiedenen Wechselwirkungsstärken zu vergleichen, wurden sie jeweils um $-\Omega(\delta t = -1)$ verschoben. Bei $U \sim 7.5$ wird das lokale Minimum bei $\delta t \sim 0$ energetisch günstiger und es findet der Phasenübergang von der metallischen zur isolierenden Phase statt.

magnetisch geordneten Phase findet man $\delta t = 0$, dass also die Hüpfamplitude des Referenzsystems dem Original entsprechen muss, was in Abbildung 3.12 gezeigt ist. Bei so großen Wechselwirkungsstärken und in der magnetisch geordneten Phase bringt die Variation des Hüpfens also keine Verbesserung der Grundzustandsenergie. Die Variation des Hüpfens verschiebt den Metall zu Isolator Phasenübergang zu etwas größeren Wechselwirkungsstärken, ver-

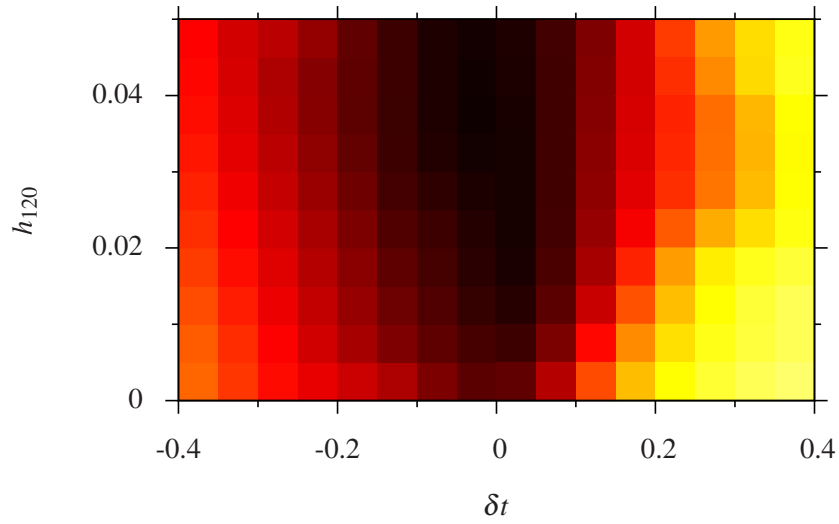


Abbildung 3.12: Heatmap des großkanonischen Potentials als Funktion des magnetischen Weissfeldes h_{120} und der variierten Hüpfamplitude δt für $U = 10$. Kleinere Werte sind dunkler. Man findet das Minimum bei $\delta t = 0$ und $h_{120} = 0.027$. In der magnetisch geordneten Phase, die bei großen Wechselwirkungsstärken auftritt, bringt die Variation des Hüpfens keine Verbesserung der Lösung mit sich.

ändert aber an den Grundaussagen des Phasendiagrammes des anisotropen Dreiecksgitters in Abbildung 3.10 nichts. Wir finden für das isotrope Dreiecksgitter weiterhin eine metallische Phase für kleine wechselwirkungsstärke. Auf den magnetischen Phasenübergang hat die Variation des Hüpfens keinen Einfluss. Weiterhin finden wir zwischen der magnetisch geordneten Phase und der metallischen Phase eine nicht magnetische Isolatorphase für $7.5 < U < 9.4$ auf dem sechs-Platz Cluster. Die Berechnungen des isotropen

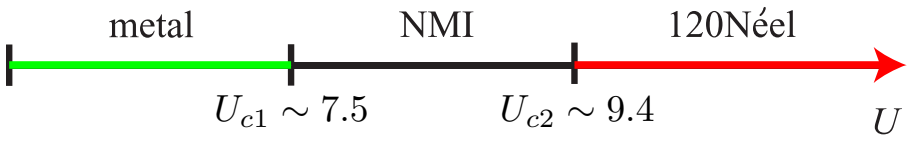


Abbildung 3.13: Phasendiagramm des isotropen Dreiecksgitters, berechnet auf dem sechs-Platz Cluster. Für die Phasengrenzen wurde die Variation des chemischen Potentials ε, der Hüpfamplitude δt sowie des symmetriebrechenden magnetischen Weissfeldes h_{120} berücksichtigt.

Dreiecksgitters wurden auch mit dem zwölf-Platz Cluster, siehe Abbildung 3.14, wiederholt und wir finden auch hier dieselben Phasen mit den Phasengrenzen für die nichtmagnetische Isolatorphase bei $7.2 < U < 8.25$. Diese kritischen Werte der Wechselwirkungsstärke stimmen sehr gut mit den Phasenübergängen überein, die mit anderen Methoden [76–79] gefunden wurden. Die Variation des Hüpfens bringt also eine Verschiebung des MIT zu höhe-

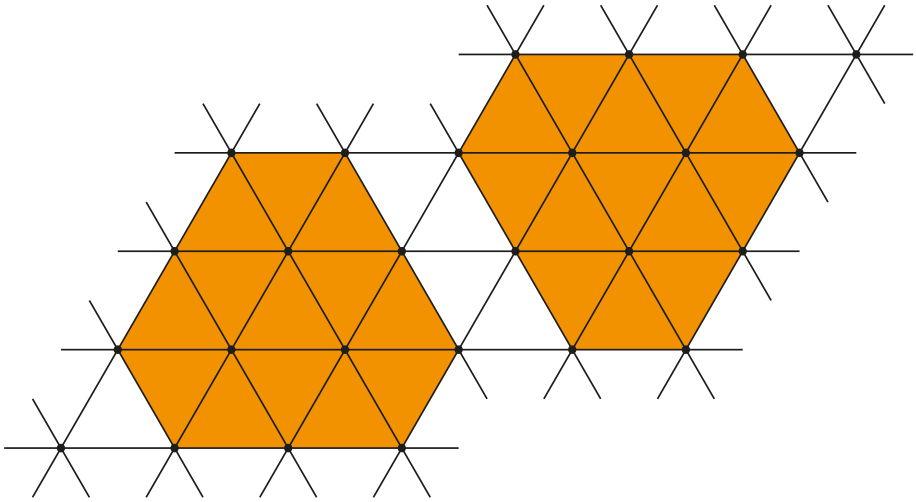


Abbildung 3.14: Supercluster bestehend aus zwei zwölf-Platz Clustern auf dem Dreieckgitter. Das zwölf-Platz Cluster benötigt die Spiegelkonstruktion eigentlich nicht um das Gitter vollständig auszufüllen. Um aber die AF-Ordnung des Quadratgitters mit einer zweiatomigen magnetischen Einheitszelle korrekt abbilden zu können ist die Hilfskonstruktion notwendig, da die Verteilung der Untergittermagnetisierung im Cluster sonst ungleichmäßig wäre. Eine detaillierte Beschreibung der Verteilung von zwei Untergittern im zwölf-Platz Cluster findet man in Abbildung 5.9.

rem U mit sich, verändert aber das Phasendiagramm des Dreiecksgitters nicht qualitativ. Aus dem Vergleich der Ergebnisse aus dem sechs und dem zwölf-Platz Cluster lässt sich insgesamt aber das in Abbildung 3.13 gezeigte Phasendiagramm für das isotrope Dreiecksgitter untermauern. Die Aussagen, die im Vorhergehenden für das anisotrope Dreiecksgitter gemacht wurden, bleiben weiterhin bestehen, lediglich die Phasengrenze der metallischen Phase, die bei relativ kleinen Wechselwirkungsstärken stattfindet, wird durch die Variation des Hüpfens beeinflusst. Da der Metall zu Isolator Übergang des Quadratgitters aber bei $U = 0$ stattfindet, ist der Verlauf der Phasengrenze der metallischen Phase klar vorgegeben. Der Bereich der nicht magnetischen Isolatorphase wird durch die Variation des Hüpfens insgesamt sehr viel kleiner.

Kapitel 4

Wechselwirkende Topologische Isolatoren

Topologische Isolatoren [80–82] sind seit ihrer theoretischen Vorhersage [18, 19, 83, 84] und experimentellen Entdeckung [22] eines der dynamischsten Gebiete der aktuellen Forschung im Bereich der Physik der kondensierten Materie. In zwei Raumdimensionen kann der topologische Isolatorzustand als spinartiges Gegenstück zum ladungsartigen integralen Quanten-Hall-Effekt interpretiert werden und wird als Quanten-Spin-Hall-Effekt (QSH) bezeichnet. Um ein gegebenes elektronisches Bandmodell in diese topologisch nichttriviale Phase zu treiben, benötigt man Bandinversion, die durch Spin-Bahn-Kopplung herbeigeführt wird. Die elektronische Bandstruktur verliert die SU(2) Spin-Symmetrie durch die Verbindung des Orbitalen- und des Spin-Freiheitsgrades. Wir unterscheiden zwei verschiedene Arten von Spin-Bahn-Kopplungen: (i) eine intrinsische Spin-Bahn-Kopplung $V_{ISO} \sim (Z^4)L^zS^z$, die die SU(2) Symmetrie herunterbricht auf eine U(1) Symmetrie, wobei S^z als Quantenzahl erhalten bleibt, und (ii) die Rashba-Spin-Bahn-Kopplung $V_{RSO} \sim \vec{E} \cdot (\vec{S} \times \vec{p})$. Während die intrinsische Spin-Bahn-Kopplung die topologische Phase erzeugt, kann die Rashba-Spin-Bahn-Kopplung keine nichttriviale Topologie hervorbringen. Bei gleichzeitiger Präsenz beider Kopplungen will die Rashba Kopplung die Bandlücke schließen und wirkt damit der intrinsischen Kopplung entgegen, was dazu führt, dass die topologische Phase unterdrückt wird durch sehr starke Rashba Kopplung. In nahezu jedem experimentellen Aufbau muss man die Rashba-Spin-Bahn-Kopplung berücksichtigen, denn diese wird z.B. durch ein Substrat oder ein externes elektrisches Feld induziert.

Das Kane-Mele-Modell wurde, als erstes mikroskopisches Modell für topologische Isolatoren, ursprünglich vorgestellt, um den QSH-Effekt in Graphen zu beschreiben [18, 19]. Nachfolgende Arbeiten zur Bandstruktur [20, 21] haben aber gezeigt, dass die Bandlücke, die durch diese Kopplung erzeugt wird, so klein ist, dass der QSH Effekt in Graphen jenseits jeder experimentellen

Messbarkeit liegt. Dennoch haben die Arbeiten von Kane und Mele dafür gesorgt, dass eine intensive Suche nach möglichen Umsetzungen solcher topologischer Isolatoren begann. Prinzipiell kann die Spin-Bahn-Kopplung vergrößert werden, indem man schwerere Elemente benutzt, da $V_{ISO} \propto Z^4$ ist, mit der atomaren Kernladungszahl Z. Daher gibt es vielversprechende Ansätze: z.B. Graphen mit schweren adsorbierten Atomen wie Indium und Thallium dotiert [85], synthetisiertem Silicen [86, 87], molekulares Graphen [88], Honigwabenfilme auf Zinn [89] oder dünne Filme von Iridium basierten honigwabenartigen Stoffen wie X_2IrO_3 (X= Na oder Li) [90, 91] sowie "digitale" Übergangsmetalloxid-Heterostrukturen [92]. Neben Spin-Bahn-Kopplungen kann der QSH-Effekt auf dem Honigwabengitter auch durch langreichweitige Wechselwirkungen hervorgerufen werden [4, 93–99], was einen völlig anderen Zugang ermöglicht.
Für den wechselwirkungsfreien Fall, wurde bereits in den ursprünglichen Arbeiten von Kane und Mele die Rashba-Spin-Bahn-Kopplung berücksichtigt. Sie zeigten, dass die QSH Phase nichtwechselwirkender Fermionen stabil ist gegen eine S^z-Symmetriebrechung. Außerdem wird die Spin-Hall Leitfähigkeit, in Anwesenheit einer Rashba Kopplung, vom quantisierten Wert abweichen. Später wurde explizit gezeigt, dass die QSH Phase sogar die Kombination aus Unordnung und Rashba Spin-Bahn-Kopplung überlebt, aber eben der Wert der Spin-Hall Leitfähigkeit signifikant vom quantisierten Wert abweicht [100].
Viele theoretische Ansätze haben sich auf die intrinsische Spin-Bahn-Kopplung beschränkt, um das Kane-Mele-Modell mit Wechselwirkung zu berechnen. Dafür gibt es hauptsächlich zwei Ursachen: einige theoretische Verfahren, wie Quanten-Monte-Carlo (QMC), setzen eine Erhaltung der U(1) Symmetrie voraus, um das bekannte Vorzeichenproblem zu umgehen. Das heißt, solche Methoden sind lediglich in der Lage die intrinsische Spin-Bahn-Kopplung zu berücksichtigen. Andererseits wird die Berechnung der topologischen Invarianten, aus der Greenschen Funktion, durch das Fehlen von Inversionssymmetrie, wie in Anwesenheit der Rashba Kopplung, sehr viel schwieriger. Im Falle fehlender Inversionssymmetrie muss man die integrale Form der Volovik Invarianten [101] berechnen, was mit numerischen Methoden äußerst herausfordernd ist.
Das Kane-Mele-Modell mit lokalem Hubbard-Wechselwirkungsterm und lediglich intrinsischer Spin-Bahn-Kopplung wird als Kane-Mele-Hubbard (KMH) Modell bezeichnet und hat aus den eben genannten Gründen in letzter Zeit sehr viel Aufmerksamkeit auf sich gezogen und wurde aus vielen verschiedenen Richtungen beleuchtet [102–122]. Diese Arbeiten liefern ein sehr gutes Verständnis für das Phasendiagramm des KMH-Modells: Für schwache Wechselwirkungsstärken bleibt der topologische Isolator, der bereits im wechselwirkungsfreien Fall durch die Spin-Bahn-Kopplung induziert wurde, bestehen und man findet auch hier metallische Randzustände. Für mittlere Wechselwirkungsstärke findet ein Phasenübergang zu einer magnetisch ge-

ordneten Phase statt. In dieser geordneten Phase ordnen sich die Spins antiferromagnetisch in einer Ebene [123] und der Phasenübergang ist 3D XY artig [105, 112]. Im isotropen Grenzfall verschwindender Spin-Bahn-Kopplung geht das Kane-Mele-Modell über in das reine nächste Nachbar Hubbard-Modell des Honigwabengitters, welches Graphen beschreibt. Hierbei findet man für schwache Wechselwirkung eine semimetallische Phase die für mittlere Wechselwirkung direkt in eine antiferromagnetisch geordnete Néel-Phase übergeht.
In diesem Kapitel wird das vollständige Kane-Mele-Hubbard-Modell mit Rashba-Spin-Bahn-Kopplung nach und nach aufgebaut. Ich gehe zunächst auf das isotrope nächste Nachbar Hubbard-Modell auf dem Honigwabengitter ein, das Graphen beschreibt. Hierbei zeige ich die Schwierigkeiten auf, die Clustermethoden mit der Semimetallischen Phase haben, und zeige wie sich Clusterasymmetrien auf die gemessene magnetische Ordnung auswirken. Dann führe ich die intrinsische Spin-Bahn-Kopplung in Form des Kane-Mele-Terms λ ein, und diskutiere ausführlich die Ergebnisse der VCA in Abhängigkeit der Clustergröße und liefere ein zusammenfassendes qualitatives Phasendiagramm: das Halbmetall und QSH-Effekt für kleine Wechselwirkung enthält; Néel-AFM und XY-AFM für starke Wechselwirkung. Da diese Ergebnisse der VCA mit dem allgemeinen Verständnis des KMH-Modells übereinstimmen führe ich in dem letzten Abschnitt dieses Kapitels die Rashba-Spin-Bahn-Kopplung ein, und bringe damit experimentelle Realisierungen dieser Systeme und theoretische Beschreibung einen Schritt näher. Ich präsentiere für verschiedene Stärken der Rashba Kopplung das wechselwirkende Phasendiagramm des KMH-Modells. Hierbei erscheint bereits im wechselwirkungsfreien Fall eine neue bisher nur von uns [2] diskutierte Phase: eine lückenlose topologische Halbleiterphase die in der gesamten Brillouin-Zone eine direkte Bandlücke für jeden Wellenvektor besitzt. Diese Phase ist auch für schwache Wechselwirkungen stabil.

4.1 Honigwaben Hubbard-Modell

Die erste erfolgreiche Herstellung von Graphen, durch Separation einer Monolage aus Graphit von Novoselov 2005 [124, 125] ca. 60 Jahre nach der theoretischen Berechnung seiner Bandstruktur durch Wallace [126], erlebte Graphen und dadurch alle Honigwabenartigen Stoffe eine Renaissance und erweckt großes Interesse. Graphen war mit seiner Honigwaben Struktur (engl. *honeycomb*) das erste echt zwei dimensionale Gitter, das man experimentell untersuchen konnte. Es war erst jetzt möglich z.B. die Bandstruktur zu messen, die eine einzigartige Eigenschaft besitzt: Bei Halbfüllung reduziert sich die Fermifläche auf die sechs Eckpunkte in der Brillouinzone, diese werden Dirac-Punkte genannt. Dies führt zu einer verschwindenden Zustandsdichte an der Fermifläche ohne eine Bandlücke zu öffnen, was man als halbmetal-

lisch bezeichnet. In der Nähe dieser Dirac-Punkte erhält man eine lineare Dispersionsrelation. Graphen kann als gewöhnliches Hubbard-Modell auf dem Honigwabengitter beschrieben werden:

$$\mathscr{H}_H = t \sum_{\langle ij\rangle,\sigma} c^\dagger_{i\sigma} c_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma} \,, \tag{4.1}$$

wobei t die Hüpfamplitude zwischen zwei benachbarten Gitterplätzen ist die durch $\langle ij\rangle$ gekennzeichnet sind. $c^{(\dagger)}_{i\sigma}$ vernichtet (erzeugt) ein Teilchen auf dem Gitterplatz i mit Spin $\sigma \in \{\uparrow,\downarrow\}$. U bezeichnet die Hubbard-Wechselwirkung und entspricht einer lokalen Coulombabstoßung und μ ist das chemische Potential mit dem die Füllung des Systems festgelegt wird.

4.1.1 wechselwirkungsfreie Bandstruktur

Das Honigwaben Gitter ist ein hexagonales Gitter mit zweiatomiger Basis, daher hat es zwei Bänder. Die Bandstruktur von Graphen ergibt sich dann wie folgt.

$$E(\mathbf{k}) = \pm t \sqrt{3 + 2\cos\left(\sqrt{3}k_x a\right) + 4\cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_x a\right)\cos\left(\frac{3}{2}k_y a\right)} \tag{4.2}$$

mit a der Gitterkonstante, die im Folgenden $a = 1$ gesetzt wird. Die Dispersion von Graphen ist in Abbildung 4.1(a) dargestellt. Man erhält zwei gespiegelte Bänder, die sich am Dirac-Punkt berühren. In der Nähe des Kreuzungspunktes ist die Dispersion linear und die Zustandsdichte verschwindet proportional zu $|\omega|$ (für kleine $\omega \to 0$), wie in Abbildung 4.1(b) zu sehen ist.

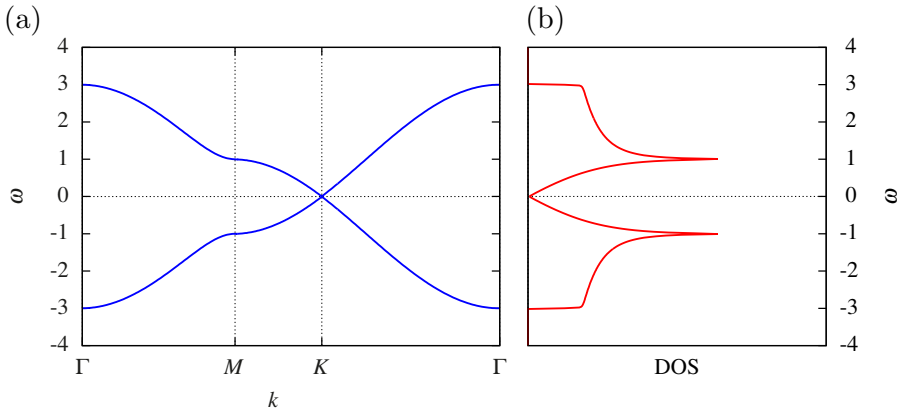


Abbildung 4.1: (a) Bandstruktur und (b) Zustandsdichte von Graphen ohne Wechselwirkung. Man sieht in der Bandstruktur den Dirac-Punkt bei K, in dessen Umgebung die Dispersion Linear ist. Es gibt keine Zustandsdichte an der Fermifläche, also auch am Dirac-Punkt.

4.1.2 Schwache Wechselwirkung: Halbmetall

Die halbmetallische Phase, die auf dem Honigwabengitter ohne und für schwache Wechselwirkung auftritt, ist viel empfindlicher gegen Störung der Gitteraufteilung in Cluster, als andere Phasen oder Gitter. So wird im Folgenden diskutiert, wie die Clustergröße und Form die Ergebnisse beeinflusst. Wir untersuchen in diesem Kapitel die Honigwabenartigen Gitter mit drei verschiedenen Clustergrößen $L_c = 6, 8, 10$, die in Abbildung 4.2 gezeigt sind. Der sechs-Platz Cluster ($L_c = 6$) wird aus einem einzelnen Hexagon gebildet, siehe Abbildung 4.2(a). Der acht-Platz Cluster ($L_c = 8$) wird aus einem Hexagon gebildet, das zwei gegenüberliegende Arme besitzt, siehe Abbildung 4.2(b). Der zehn-Platz Cluster ($L_c = 10$) wird aus zwei aneinandergrenzenden Hexagons gebildet, siehe Abbildung 4.2(c). Bei der Berechnung von

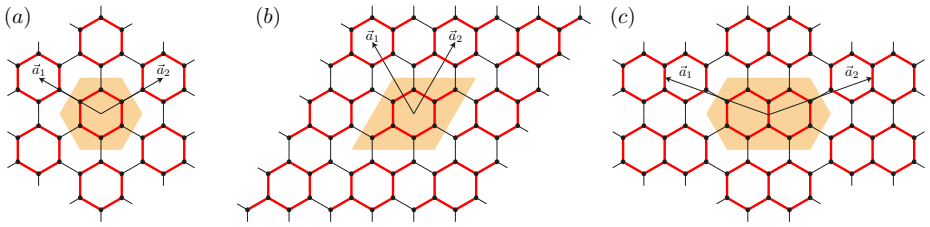


Abbildung 4.2: Clusterstrukturen wie sie für die Berechnung in der VCA für das Honigwabengitter benutzt werden. (a) sechs-Platz Cluster (b) acht-Platz Cluster und (c) zehn-Platz Cluster mit der jeweiligen Aufteilung des ausgedehnten Gitters durch die Vektoren $\vec{a}_1$ und $\vec{a}_2$. Die roten Verbindungen zeigen die Hüpfen innerhalb des Clusters an t_{cl}, während die schwarzen links die Hüpfamplituden zwischen den Clustern darstellen und immer den wechselwirkungsfreien Wert t haben.

Graphen, mit dem sechs-Platz Cluster als Referenzsystem, bildet sich durch

Anlegen einer infinitesimalen Wechselwirkung $U > 0$ sofort eine endliche Bandlücke aus. Im Gegensatz dazu liefern sowohl das acht- als auch der zehn-Platz Cluster einen ausgedehnten Bereich in dem die halbmetallische Phase stabil ist, und erst oberhalb eines kritischen Wertes U_c öffnet sich eine Bandlücke. In Abwesenheit von Spin-Bahn-Kopplungen erwarten wir eine stabile halbmetallische Phase für $0 < U \leq U_c$, wobei der Effekt der Wechselwirkung sich auf eine Renormalisierung der Fermigeschwindigkeit beschränken sollte. Wie in Abschnitt 2.3 bereits erklärt wurde, wird zunächst das Referenzsystem, also der Cluster, mit Hilfe von ED gelöst. Die Lösung des Clusters wird als Referenzsystem über das gesamte Gitter gelegt, und die Cluster werden mit der wechselwirkungsfreien Hüpfamplitude t verbunden. Wenn nun bei der Berechnung des Clusters der Hamiltonian die Hüpfamplitude $t_{cl} = t$ und die Wechselwirkungsstärke U enthält, wird die Hüpfamplitude durch die Wechselwirkung renormiert zu $\tilde{t_{cl}}$. Somit unterscheiden sich $\tilde{t_{cl}}$ und t für $U > 0$. Man erhält eine Anisotropie mit der Einheitszelle des Clusters, die Translationssymmetrie des Gitters wird gebrochen. Die Hüpfamplitude wird auch als Variationsparameter behandelt $t_{cl} = t + \delta t$, um einen stationären Punkt des großkanonischen Potentials zu finden. Dadurch wird diese Anisotropie bis zu einem gewissen Grad ausgeglichen.
Wir sehen uns im einzelnen den Einfluss der Cluster auf die Ergebnisse an und beginnen mit dem sechs-Platz Cluster, das nur aus einem Ring besteht. Ein Referenzsystem, bestehend aus sechs-Platz Clustern, führt bei endlicher aber nicht zu starker Wechselwirkung zu einem "plaquette-isotropic" Honigwaben Modell [105]. Hierbei ist besonders auffällig, dass sich die Bandlücke sofort öffnet, sobald $\tilde{t_{cl}} \neq t$ ist, d.h. eine infinitesimale Anisotropie führt zu einer endlichen Bandlücke. In Übereinstimmung mit den Überlegungen von Wu *et al.* [105] finden wir mit dem sechs-Platz Cluster für alle endlichen Wechselwirkungsstärken $U > 0$ eine endliche Bandlücke, siehe Abbildung 4.3, und es bildet sich eine nichtmagnetische Isolatorphase. Die Variation des Hüpfens kann die Anisotropie zwar reduzieren, was sich in einer Reduktion der Bandlücke wiederspiegelt, aber nicht vollständig aufheben. Hierzu haben wir in Abbildung 4.3 die CPT-Lösung (pink), bei der das Hüpfen nicht variiert wird, mit der VCA-Lösung (rot) mit Variation des Hüpfens verglichen.
Wir haben auch überprüft, ob nichtwechselwirkende Badplätze einen stabilisierenden Einfluss auf die halbmetallische Phase haben. Dazu wurde an jeden korrelierten Platz ($L_c = 6$) je ein nichtkorrelierter Badplatz ($L_b = 6$) angekoppelt, dies führt effektiv zu einem zwölf-Platz Cluster $L_c^{eff} = L_c + L_b = 12$. Auch dieser Ansatz bringt lediglich eine geringe Verbesserung der Lösung (cyan), die Bandlücke wird weiter reduziert, aber bleibt bestehen für endliche Wechselwirkung $U > 0$ und die halbmetallische Lösung bleibt weiterhin auf den wechselwirkungsfreien Fall beschränkt. Wir schließen daraus, dass die Empfindlichkeit bezüglich der Instabilität des "plaquette-isotropic" Ho-

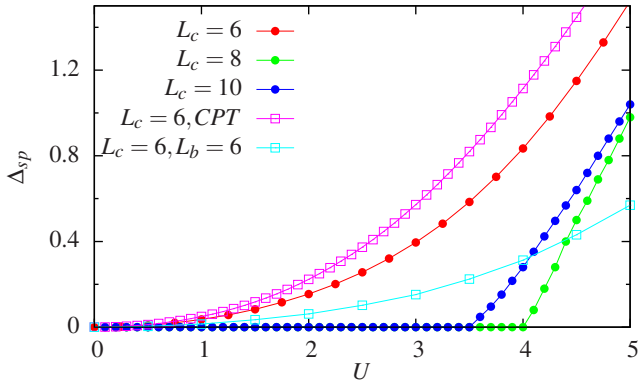


Abbildung 4.3: Bandlücke des Einteilchenspektrums Δ_{sp} als Funktion der Wechselwirkung U ($\lambda = 0$) für den sechs-, acht- und zehn-Platz Cluster ($L_c = 6, 8, 10$). Zusätzlich noch für den sechs-Platz Cluster ohne Variation des Hüpfparameters, was der CPT Lösung entspricht, sowie den sechs-Platz Cluster mit je einem Badplatz pro korreliertem Gitterplatz $L_b = 6$. Es wurden jeweils nur die paramagnetische Lösung gezeigt.

nigwaben Modells [105] zu hoch ist, und mit der VCA mit dem sechs-Platz Cluster als Referenzsystem auch immer eine endliche Anisotropie entsteht.

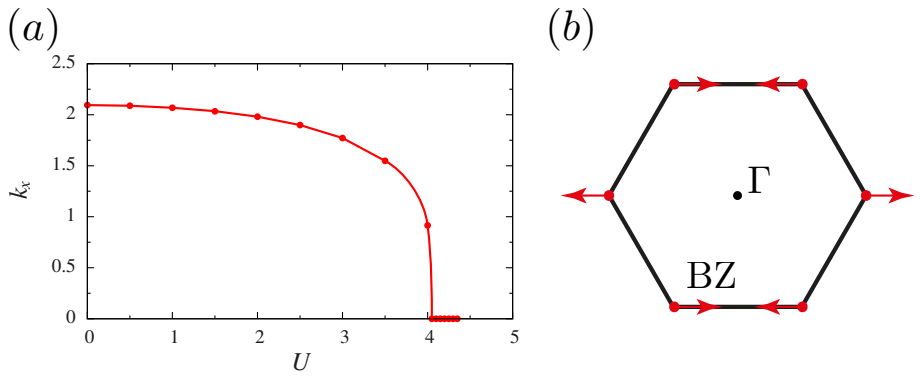


Abbildung 4.4: (a) k_x-Position eines Dirac-Punktes im Wechselwirkenden Graphen bei Berechnung mit dem acht-Platz Cluster als Referenzsystem.(b) rote Punkte sind die Positionen der Dirac-Punkte in der Brillouinzone. Je zwei Dirac-Punkte bewegen sich mit zunehmender Wechselwirkung U (durch rote Pfeile angedeutet) aufeinander zu, bis sie verschmelzen und sich im Anschluss eine Bandlücke öffnet, hier bei $U = 4.05$.

Wenn wir den acht- und zehn-Platz Cluster betrachten, finden wir dass sich eine halbmetallische Phase stabilisiert bis zu kritischen Wechselwirkungsstärken von $U = 4.0$ auf dem acht-Platz Cluster und $U = 3.5$ auf dem zehn-Platz Cluster. Eine genaue Untersuchung hat ergeben, dass auch hier die Form der Cluster eine Rolle spielt. Die Anisotropie zwischen $\tilde{t_{cl}}$ und t führt hier aber nicht zu einem instantanen Öffnen der Bandlücke, sondern zu einer Verschie-

bung der Dirac-Punkte. Keines dieser Systeme erhält die Rotationssymmetrie des Gitters, da der acht-Platz Cluster zusätzlich zu dem Ring noch zwei abstehende Arme hat, und der zehn-Platz Cluster aus zwei aneinandergrenzenden Ringen besteht. Beide brechen die C_{3v} Symmetrie des KMH-Modells. Die Verschiebung der Dirac-Punkte im Wechselwirkenden Graphen mit Hilfe des acht-Platz Clusters ist in Abbildung 4.4 gezeigt, und findet auf dem zehn-Platz Cluster analog statt. Je zwei Dirac-Punkte wandern, mit zunehmender Wechselwirkung, aufeinander zu. Dies ist nachvollziehbar, da die Position der Dirac-Punkte durch die dreifache diskrete Rotationssymmetrie des Honigwabengitters geschützt ist, diese aber in den beiden Clustern gebrochen ist. Die Dirac-Punkte wandern bis sie verschmelzen. Dadurch verlieren die Dirac-Punkte ihren topologischen Schutz und eine Bandlücke öffnet sich. Die Situation ähnelt der des $t_1 - t_2$-Modells des Honigwabengitters, in dem ein ähnliches Verhalten der Dirac-Punkte beschrieben wird [127].
Hassan und Sénéchal [128] sind der Meinung, dass ein Badplatz je korreliertem Gitterplatz nicht ausreicht um die halbmetallische Phase zu stabilisieren. Liebsch und Wu argumentieren dagegen, dass das Öffnen der Bandlücke mit der Wahl des Referenzsystems als ringförmiges sechs-Platz Cluster in direktem Zusammenhang steht, und damit mit dem Brechen der Translationssymmetrie in Clustermethoden, wie der VCA, einhergeht.
Wir finden auf dem acht- und zehn-Platz Cluster eine halbmetallische Phase, deren paramagnetische Phasengrenze bei $U = 4.0$ bzw. $U = 3.5$ liegen. Wir stimmen mit Hassan und Sénéchal sowie Wu und Liebsch überein, dass das Auftreten der Bandlücke des sechs-Platz Clusters für infinitesimale Wechselwirkung $U > 0$ ein numerisches Artefakt von Clustermethoden ist und keine physikalische Relevanz besitzt.

4.1.3 Starke Wechselwirkung: magnetische Ordnung

Für das starkwechselwirkende Graphen ist bekannt, dass es eine antiferromagnetische Néel-Phase besitzt. Da das System keinerlei Symmetrien bricht, muss diese antiferromagnetische Ordnung rotationssymmetrisch bezüglich der Ausrichtung der Spins sein. Alle untersuchten Cluster zeigen in der VCA einen Übergang zu einer antiferromagnetischen Phase. Der magnetische Ordnungsparameter wird ab der kritischen Wechselwirkungsstärke endlich, was in Abbildung 4.5 gezeigt ist. Die kritischen Werte sind $U_c = 3.8$ für den sechs-Platz Cluster, $U_c = 2.4$ für den acht-Platz Cluster sowie $U_c = 2.9$ für den zehn-Platz Cluster. Der magnetische Phasenübergang wird bestimmt, indem man Weissfelder h^α anlegt, mit $\alpha = x, y, z$, wie in Abschnitt 2.4.2 beschrieben. In der magnetischen Phase findet man einen stationären Zustand mit geringerer Energie, d.h. eine symmetriegebrochene Lösung hat niedrigere Energie als die paramagnetische Lösung $h^\alpha = 0$. Da die kritischen Werte für den acht und zehn-Platz Cluster unterhalb der kritischen Werte für den paramagnetischen Übergang vom SM zum NMI liegen, findet ein

direkter Übergang vom SM zum antiferromagnetischen Isolator statt. Wir finden also, mit Hilfe des sechs-Platz Cluster ab einer kritischen Wechselwirkungsstärke von $U_c = 3.8$ eine AFM Isolatorphase. Mit dem acht- bzw. dem zehn-Platz Cluster als Referenzsystem findet man jeweils einen AFM ab kritischen Wechselwirkungsstärken von $U_c = 2.4$ bzw. $U_c = 2.9$ Der acht-Platz

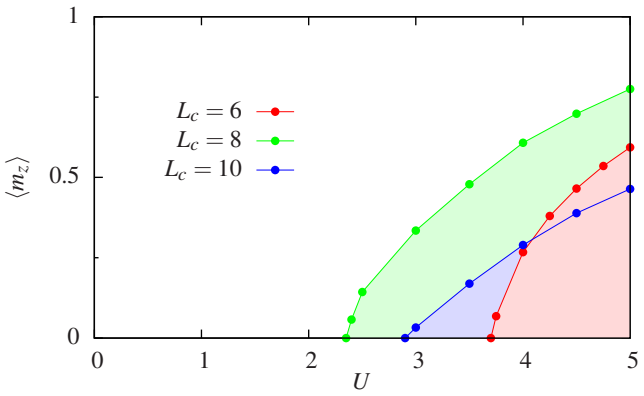


Abbildung 4.5: Magnetischer Ordnungsparameter als Funktion der Wechselwirkung U ($\lambda = 0$) für den sechs-, acht- und zehn-Platz Cluster ($L_c = 6, 8, 10$).

Cluster hat, wie man am kritischen Wert der Wechselwirkungsstärke bereits sieht, die stärkste Tendenz in den antiferromagnetisch geordneten Zustand zu wechseln. Auch die Betrachtung des magnetischen Ordnungsparameters legt diesen Schluss nahe, da dieser auf dem acht-Platz Cluster am schnellsten zunimmt und schon für kleine Wechselwirkungen einen, im Vergleich mit den anderen Referenzsystemen, hohen Wert annimmt. Dies ist intuitiv verständliche, da das acht-Platz Cluster zwei offene Arme besitzt, an denen je ein Endplatz sitzt. Der zehn-Platz Cluster als Referenzsystem liefert zwar ein geringeres kritisches U als das sechs-Platz Cluster, dennoch scheint die Magnetisierung in diesem langsamer anzusteigen als im sechs-Platz Cluster.

4.1.4 Clusterabhängigkeit der Ergebnisse und effektives Phasendiagramm

Wir finden in der VCA für das Graphen Ergebnisse, die sehr stark von der Clustergröße und Geometrie abhängen. So liefert das sechs-Platz Cluster als Referenzsystem lediglich für $U = 0$ eine halbmetallische Phase, gefolgt von einer nichtmagnetischen Phase und erst für $U > 3.8$ eine rotationssymmetrische AFM Isolatorphase. Bei der nichtmagnetischen Isolatorphase handelt es sich allerdings um ein numerisches Artefakt und hat keine physikalische Relevanz, wie im vorhergehenden Abschnitt 4.1.2 erläutert. Das acht- und zehn-Platz Cluster liefern eine halbmetallische Phase für kleine

Wechselwirkungen, mit einem direkten Übergang in die AFM Isolatorphase bei $U_c = 2.4\,(L_c = 8)$ und $U_c = 2.9\,(L_c = 10)$. Durch die maximal mögliche Symmetrie, die das sechs-Platz Cluster als einziges erhält, und der geringsten Tendenz in die magnetisch geordnete Phase überzugehen, eignet sich dieses besonders zur Untersuchung der magnetischen Ordnung. Allerdings ist es aufgrund der Instabilität, die aus dem "plaquette-isotropic" Honigwaben Modell [105] kommt, für endliche Wechselwirkung nicht möglich eine halbmetallische Phase mit Hilfe des sechs-Platz Clusters zu finden. Das acht- und zehn-Platz Cluster geben in dieser Hinsicht ein korrektes Bild wieder, und liefern für schwache Wechselwirkung ein SM und für große U einen AFM Isolator. Da die Phasengrenzen mit zunehmender Clustergröße kein Konvergenzverhalten zeigen, ist es nicht möglich einen exakten Wert für die Phasengrenze anzugeben. Dieses Ergebnis wurde in dem qualitativen Phasendiagramm in Abbildung 4.6 festgehalten.

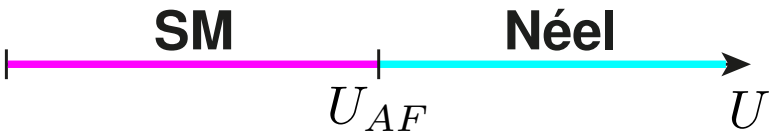


Abbildung 4.6: Schematisches Phasendiagramm des Graphens, das die Ergebnisse aller mit der VCA berechneten Cluster beinhaltet. Wir finden eine halbmetallische Phase für kleine Wechselwirkung und einen Néel-AFM für starke Wechselwirkung.

4.2 Kane-Mele-Hubbard-Modell

Bereits 1988 hat Haldane ein Modell vorgeschlagen [129], das durch Brechen der Zeitumkehrsymmetrie einen Quanten-Hall-Effekt ohne Landau Levels zeigt. Er führt in einem spinlosen fermionischen System ein komplexes übernächste Nachbarhüpfen $i\lambda$ ein, welches die Zeitumkehrsymmetrie bricht. Kane und Mele haben zwei Haldane-Modelle h_σ zu einem Spinvollen Modell zusammengesetzt, je eines für $\uparrow$-Spin und $\downarrow$-Spin

$$\mathscr{H}_{KM} = \begin{pmatrix} h_\uparrow & 0 \\ 0 & h_\downarrow \end{pmatrix} = t \sum_{\langle ij\rangle,\sigma} c^\dagger_{i\sigma} c_{j\sigma} + i\lambda \sum_{\langle\langle ij\rangle\rangle} \sum_{\alpha\beta} c^\dagger_{i\sigma} \nu_{ij} \sigma^z_{\sigma\sigma'} c_{j\sigma'} \tag{4.3}$$

Hierbei gilt für $h_\downarrow(k) = \theta h_\uparrow(k)\theta^{-1} = h^*_\uparrow(-k)$ mit dem Zeitumkehroperator θ. Somit ist für den Kane-Mele-Hamiltonian (4.3) die Zeitumkehrsymmetrie wieder erhalten. Das Modell wurde von Kane und Mele [19] ursprünglich zur Beschreibung von Graphen entwickelt und untersucht. Später hat sich jedoch herausgestellt, dass eine Bandlücke in Graphen nicht messbar ist, da die Spin-Bahn-Kopplung in Graphen zu klein ist [20, 21].
Dennoch haben die Arbeiten von Kane und Mele dafür gesorgt, dass eine intensive Suche nach möglichen Umsetzungen solcher topologischer Isolatoren

begann. Prinzipiell kann die Spin-Bahn-Kopplung vergrößert werden indem man schwerere Elemente benutzt, da die intrinsische Spin-Bahn-Kopplung proportional zur vierten Potenz der atomaren Kernladungszahl $V_{ISO} \propto Z^4$ ist. Daher gibt es vielversprechende Ansätze: z.B. Graphen mit schweren Adatomen wie Indium und Thallium zu dotieren [85], synthetisiertes Silicen [86, 87], molekulares Graphen [88], Honigwabenfilme auf Zinn [89] oder dünne Filme von Iridium basierten honigwabenartigen Stoffen wie X_2IrO_3 (X= Na oder Li) [90, 91] sowie "digitale" Übergangsmetalloxid Heterostrukturen [92].
Das Phasendiagramm des Kane-Mele-Modells führt im Grenzfall verschwindender Spin-Bahn-Kopplung zu dem bereits eingeführten Phasendiagramm des Graphen aus Abschnitt 4.1 und zeigt für schwache Wechselwirkung eine halbmetallische Phase und für starke Wechselwirkung einen Néel-AFM Isolator. Die Spin-Bahn-Kopplung bricht die SU(2) Symmetrie auf eine U(1) Symmetrie, was dazu führt, dass die rotationssymmetrische Néel-AFM Ordnung auf eine XY-AFM Ordnung reduziert wird. Bereits kleine Spin-Bahn Kopplungen stören die halbmetallische Phase und führen zu einer endlichen Bandlücke die zu einem topologischen Isolator gehört. Der topologische Isolator besitzt eine isolierende Bandlücke im Bulk, aber metallische Randzustände, die Ladung und Spin transportieren. Diese Phase kann auch mit einer $\mathbb{Z}_2$ topologischen Invarianten beschrieben werden, die sie von einem trivialen Isolator unterscheidet. In diesem Abschnitt gehe ich zunächst auf

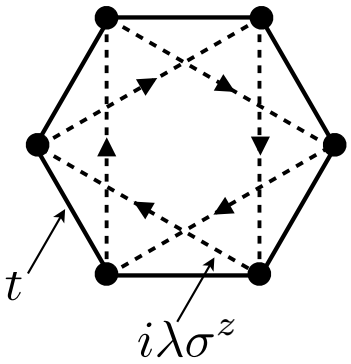


Abbildung 4.7: Schematische Darstellung des Kane-Mele-Hubbard-Modells mit nächste Nachbarn Hüpfen auf dem Honigwabengitter und übernächste Nachbar Spin-Bahn-Kopplung nach Gleichung (4.6)

Eigenschaften ein, die bereits aus der wechselwirkungsfreien Bandstruktur folgen. Im Anschluss untersuche ich den Einfluss schwacher Wechselwirkung auf den topologischen Isolator. Dazu führe ich die $\mathbb{Z}_2$ topologische Invariante ein und untersuche Randzustände der Quanten-Spin-Hall Phase. Dann beleuchte ich magnetische Ordnung bei starker Wechselwirkung, wobei nur der

sechs-Platz Cluster die Rotationssymmetrie des Gitters korrekt wiedergibt, und deshalb nur dieser die korrekte AFM Ordnung liefert. Zuletzt wird die Clusterabhängigkeit aller Ergebnisse diskutiert und ein zusammenfassendes qualitatives Phasendiagram gezeigt.

4.2.1 wechselwirkungsfreie Bandstruktur

Der topologische Isolator ist ein elektronischer Bandisolator, der sich bereits im wechselwirkungsfreien System des Kane-Mele-Modells zeigt. Nur im Grenzfall verschwindender Spin-Bahn-Kopplung findet man die halbmetallische Phase des Graphens. Zur elektronischen Bandstruktur des Graphens kommt ein Term aus der Spin-Bahn-Kopplung hinzu und man erhält:

$$E(\mathbf{k}) = \pm\sqrt{t^2\left(3 + 2\cos\left(\sqrt{3}k_x\right) + 4\cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_x\right)\cos\left(\frac{3}{2}k_y\right)\right) + 4\lambda^2 v(k_x,k_y)^2} \tag{4.4}$$

$$\text{mit } v(k_x,k_y) = 2\cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_x\right)\sin\left(\frac{1}{2}k_y\right) - \sin(k_y) \tag{4.5}$$

Direkt proportional zur Spin-Bahn-Kopplung geht eine Bandlücke auf, bis

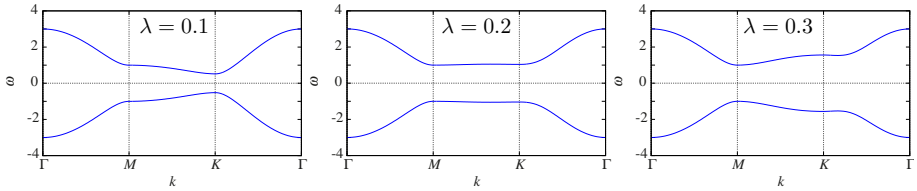


Abbildung 4.8: Bandstruktur des wechselwirkungsfreien Kane-Mele-Hubbard-Modells für $\lambda = 0.1, 0.2$ und 0.3. Die Spin-Bahn-Kopplung führt zu einem öffnen der Bandlücke bei K. Die Bandlücke bei M bleibt davon unberührt, was zu einer Maximalen Bandlücke von $\Delta_{sp} = 2$ führt.

zu einer Stärke der Spin-Bahn-Kopplung von $\lambda < \frac{1}{3\sqrt{3}}t$. Die Bandlücke bleibt dann konstant bei $\Delta = 2t$ für $\lambda > \frac{1}{3\sqrt{3}}t$, siehe Abbildung 4.9. Die direkte Bandlücke am K-Punkt geht weiter mit der Kopplungsstärke auf, aber die Dispersion am M-Punkt bleibt unverändert, was den Dispersionen in Abbildung 4.8 zu sehen ist.

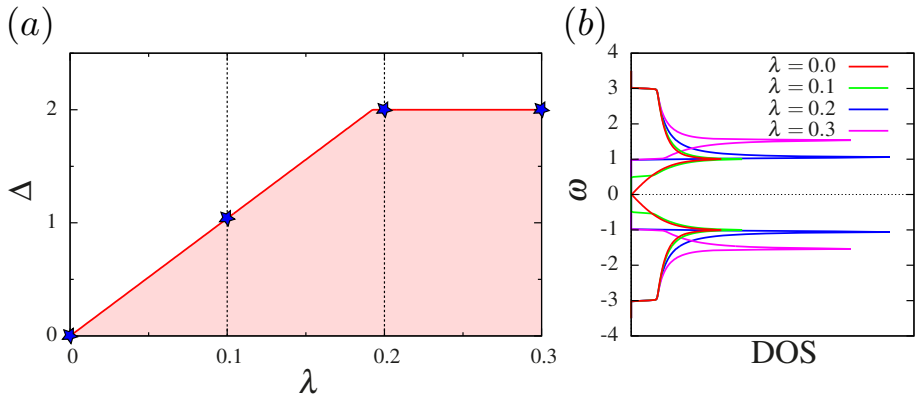


Abbildung 4.9: (a) Einteilchenbandlücke Δ als Funktion der Spin-Bahn-Kopplung, zunächst mit linearem Anstieg bis zur Sättigung bei $\lambda = \frac{1}{3\sqrt{3}}$ (b) Lokale Zustandsdichten für $\lambda = 0.0, 0.1, 0.2, 0.3$, für die Dispersionen, die in Abbildung 4.8 gezeigt und links als Sterne markiert sind. Bei $\lambda = 0.2$ und $\lambda = 0.3$ sind die Bandlücken identisch.

4.2.2 Schwache Wechselwirkung: topologischer Band-Isolator

Das Kane-Mele-Hubbard-Modell wird wie folgt geschrieben

$$\mathscr{H}_{KMH} = t \sum_{\langle ij\rangle,\sigma} c^\dagger_{i\sigma} c_{j\sigma} + i\lambda \sum_{\langle\langle ij\rangle\rangle} \sum_{\alpha\beta} c^\dagger_{i\sigma} \nu_{ij} \sigma^z_{\sigma\sigma'} c_{j\sigma'} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma} \tag{4.6}$$

wobei hier zu den bekannten Termen des Hubbard-Modells mit t, U, μ noch der Spin-Bahn-Kopplungsterm λ hinzukommt. Der Kopplungsterm ist ein übernächste Nachbarhüpfen, das je nach Spinsorte, durch die Paulimatrix σ^z und Sprungrichtung ν_{ij}, siehe Abbildung 4.7, ein Vorzeichen erhält.
Das schwach Wechselwirkende Kane-Mele-Hubbard-Modell liefert einen topologischen Band-Isolator für endliche intrinsische Spin-Bahn-Kopplung. Topologische Isolatoren [80–82] besitzen genau wie triviale Isolatoren eine Bandlücke im Einteilchenspektrum. In zwei Dimensionen nennt man sie auch Quanten-Spin-Hall Zustände, welche sich von trivialen Isolatoren unterscheiden lassen, z.B. durch die $\mathbb{Z}_2$ topologische Invariante, die ein Analogon zur Chernzahl beim integralen Quanten-Hall-Effekt darstellt. Außerdem haben topologische Isolatoren, trotz der Bandlücke des Bulks, einen metallischen Rand, die Spin und Ladung transportieren kann. Diese werden im Folgenden für das Kane-Mele-Modell gezeigt.

4.2.2.1 $\mathbb{Z}_2$ topologische Invariante als Ordnungsparameter

Bereits Kane und Mele haben in ihrer Arbeit [18] gezeigt, dass die QSH Phase eine $\mathbb{Z}_2$ topologische Invariante besitzt, die sie von einem trivialen Isolatorzustand unterscheidet. Volovik hat durch seine Arbeit [101] gezeigt wie man topologische Invarianten durch Einteilchen-Greensche Funktionen

ausdrücken kann. Kürzlich hat Gurarie [130] dann Voloviks Invariante für topologische Isolatoren umformuliert. In inversionssymmetrischen Systemen besteht die Möglichkeit diese Invariante weiter zu vereinfachen [131, 132]. Motiviert von dem Konzept der Reduktion der Dimensionen in der topologischen Feldtheorie [81, 133], fand man eine vereinfachte Darstellung der $\mathbb{Z}_2$ topologische Invariante durch einen Wess-Zumino-Witten Term mit der voll wechselwirkenden Greenschen Funktion [131].
Ist Inversionssymmetrie gegeben, d.h. beispielsweise keine antiferromagnetische Ordnung vorhanden, können wir dem Rezept folgen, das Wang *et al.* entwarfen um die topologische Invariante aus den Paritätseigenwerten der Greenschen Funktion zu berechnen, die wir aus der VCA erhalten. Diese benötigen wir dann nur am zeitumkehrinvarianten Impulsvektor Γ_i (engl. *time reversal invariant momentum* TRIM) sowie bei Null Energie.
Wir starten also mit der Greenschen Funktion $G(\mathbf{k}, \omega)$, die eine Matrix der Dimension $N \times N$ ist, wobei $N = 2L_c$ ist. G kann jetzt, genau wie G^{-1}, diagonalisiert werden:

$$G(\mathbf{k}, \omega)^{-1} \left|\alpha(\mathbf{k}, \omega)\right\rangle = \mu_\alpha(\mathbf{k}, i\omega) \left|\alpha(\mathbf{k}, \omega)\right\rangle \tag{4.7}$$

wobei $\mu_\alpha \in \mathbb{C}$. Die Greensche Funktion G besitzt die selben Eigenvektoren $|\alpha(\mathbf{k}, \omega)\rangle$ wie G^{-1}, aber inverse Eigenwerte μ_α^{-1}. Die Zustände an den TRIMs, $|\alpha(\Gamma_i, \omega)\rangle$ sind simultane Eigenvektoren der Greenschen Funktion G und des Paritätsoperators P und erfüllen deshalb auch:

$$P \left|\alpha(\Gamma_i, \omega)\right\rangle = \eta_\alpha \left|\alpha(\Gamma_i, \omega)\right\rangle . \tag{4.8}$$

Da $\mu_\alpha(\Gamma_i, 0)$ eine reelle Zahl ist, kann man zwischen positiven ($\mu_\alpha(\Gamma_i, 0) > 0$) und negativen ($\mu_\alpha(\Gamma_i, 0) < 0$) Eigenwerten unterscheiden. Dadurch lässt sich die $\mathbb{Z}_2$ topologische Invariante Δ wie folgt definieren:

$$(-1)^\Delta = \prod_{\mu_\alpha(\Gamma_i, 0) > 0} \eta_\alpha^{1/2} = \pm 1 \tag{4.9}$$

wobei Δ nur Werte aus $\{0, 1\}$ annehmen kann. In einer topologischen Phase ist die topologische Invariante $\Delta = 1$ sonst $\Delta = 0$. In Abbildung 4.10 wurde die topologische Invariante als Funktion der Wechselwirkung für eine intrinsische Spin-Bahn-Kopplung von $\lambda = 0.1$ auf dem sechs-Platz Cluster gezeigt. Der Phasenübergang wurde noch mit dem Schließen der Einteilchenbandlücke verglichen, und exakt der selbe Wert von $U = 4.2$ gefunden. Dies sind nichtmagnetische Berechnungen, da die topologische Invariante nicht berechnet werden kann, sobald die Zeitumkehrsymmetrie gebrochen wird. Ebenso haben wir in Abbildung 4.11 das paramagnetische $U - \lambda$-Phasendiagram mit dem acht-Platz Cluster berechnet, wobei wir die halbmetallische Phase für $\lambda = 0$ finden und für endliche Spin-Bahn-Kopplung die topologische Phase. Oberhalb der Phasengrenze findet man einen trivialen Isolator. In einer separaten Rechnung wurde die antiferromagnetische Ordnung miteinbezogen (siehe Abschnitt 4.2.3).

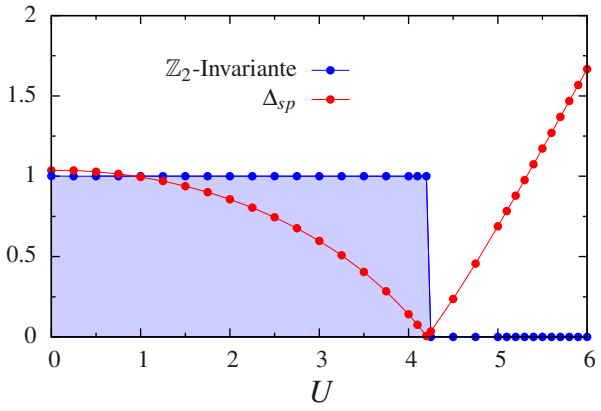


Abbildung 4.10: Topologische Invariante als Funktion der Wechselwirkung für $\lambda = 0.1$ auf dem sechs-Platz Cluster. Im Vergleich dazu findet das Schließen der Einteilchenbandlücke Δ_{sp} bei exakt dem selben Wert von $U = 4.2$ statt.

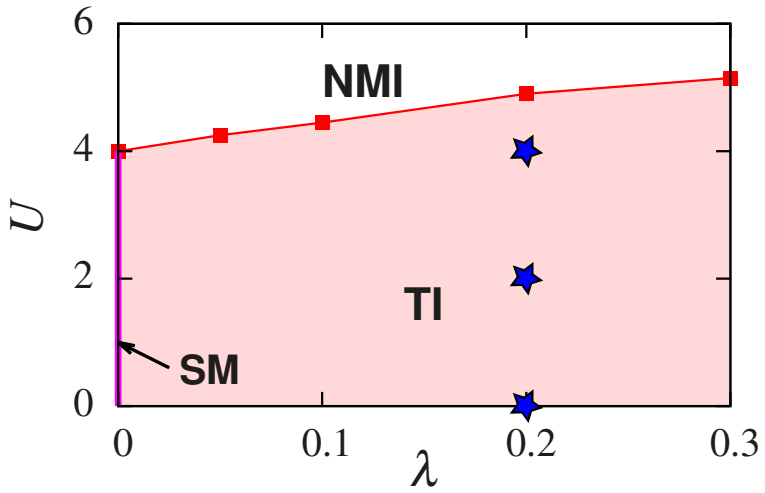


Abbildung 4.11: Die Phasengrenze in der U-λ Ebene zwischen topologischen und trivialen Isolator wurde aus der $\mathbb{Z}_2$ Invarianten berechnet. Hierbei wurde nur die nichtmagnetische Lösung betrachtet. Die Sterne markieren die Werte für die in Abbildung 4.14 die Randzustände berechnet wurden.

4.2.2.2 Metallische Randströme des Quanten-Spin-Hall-Zustandes

Topologische Isolatoren bieten eine weitere sehr gute Möglichkeit der Klassifizierung. Neben der topologischen Invarianten, die aus der Greenschen Funktion des Körpers berechnet wurde, besteht die Möglichkeit topologische Isolatoren über metallische Randzustände zu identifizieren. Diese metallischen Randzustände sind in der Lage, widerstandslos Ladung und Spin zu transportieren und sind ein ausgezeichnetes Merkmal der $\mathbb{Z}_2$ topologischen Isolatoren, die wir hier untersuchen. Der verlustfreie Transport von Ladung und Spin wurde bereits in einigen Experimenten nachgewiesen [23, 134]. Die Identifikation des topologischen Isolators durch Randzustände ist eine sehr gute Möglichkeit, vor allem im Falle von gebrochener Inversionssymmetrie, wie sie später durch die Einführung der Rashba-Spin-Bahn-Kopplung auftritt.
Um die Randzustände zu bestimmen wird eine zylindrische Geometrie des Systems gewählt. Dazu werden mehrere Cluster übereinander (y-Richtung) zu einem Supercluster zusammengefügt, welches dann periodisch in der x-Richtung fortgesetzt wird. Dadurch erreicht man eine endliche Ausdehnung mit Rand in einer Richtung und unendlicher Ausdehnung in der anderen Richtung. In Abbildung 4.12 wurde dies schematisch mit nur drei Clustern dargestellt. Zur Berechnung der metallischen Randzuständen in topologischen Isolatoren haben wir immer mindestens acht oder mehr Cluster übereinander gestapelt, da es notwendig ist, die Ränder räumlich ausreichend zu trennen. Wenn die Ränder einer Probe nahe beieinander liegen, können Aufgrund der endlichen Eindringtiefe der Randzustände Kanäle der selben Spinsorte auf gegenüberliegenden Probenseiten überlappen, sich an den Randzuständen sofort eine Energielücke öffnet. Diese Rückstreuung führt dann zu einer Bandlücke der Randzustände. In dem Fall ist es notwendig die Ränder der Probe weiter voneinander zu trennen, also mehr Cluster im Supercluster aneinanderfügen.
Der topologische Isolator beschreibt in zwei Dimensionen den Quanten-Spin-Hall-Effekt und hat am Rand der Probe zwei gegeneinander laufende Kanäle (siehe Abbildung 1.6). Die Kanäle sind durch die Zeitumkehrsymmetrie des Systems geschützt, so dass elastisches Rückstreuen eines Elektrons aus einem Kanal in den anderen verboten ist, wie in Abschnitt 1.4. In Abbildung 4.13 sind die Randzustände des Quanten-Spin-Hall-Zustandes am unteren Rand der Probe dargestellt. In der Spin aufgelösten Spektralfunktion ist klar zu erkennen, wie die Spins in verschiedene Richtung fließen, da die Fermigeschwindigkeit, also die Steigung der Dispersion an der Fermifläche genau entgegengesetzt ist. Für die Darstellung wurde nicht die Spektralfunktion der gesamten Probe gezeigt, sondern nur die Beiträge der untersten Einheitszelle der Probe.
In Abbildung 4.14 ist die gesamte Spektralfunktion der Probe in der zylindrischen Geometrie gezeigt. Man sieht für drei Werte von $U = 0, 2, 4$ bei einer

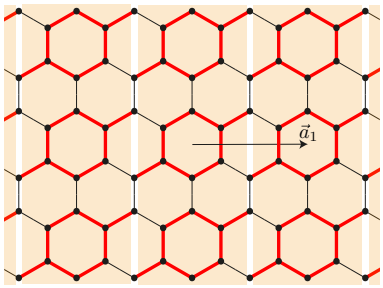


Abbildung 4.12: Acht-Platz Cluster Anordnung zur Berechnung der Randzustände. Es werden mehrere Cluster (rote Linien) zu einem Supercluster (orange unterlegt) zusammengefügt, die dann in nur einer Richtung mit dem Superclustergittervektor $\vec{a}_1$ periodisch fortgesetzt werden. Der hier gezeigte Supercluster dient nur der schematischen Darstellung und enthält nur drei Cluster. Für die Berechnung der Randzustände wurden aber immer mindestens acht Cluster benutzt. Die roten Verbindungen zeigen die Hüpfen innerhalb des Clusters t_{cl} an, während die schwarzen Verbindungen die Hüpfen zwischen den Clustern beschreiben und immer den wechselwirkungsfreien Wert t haben.

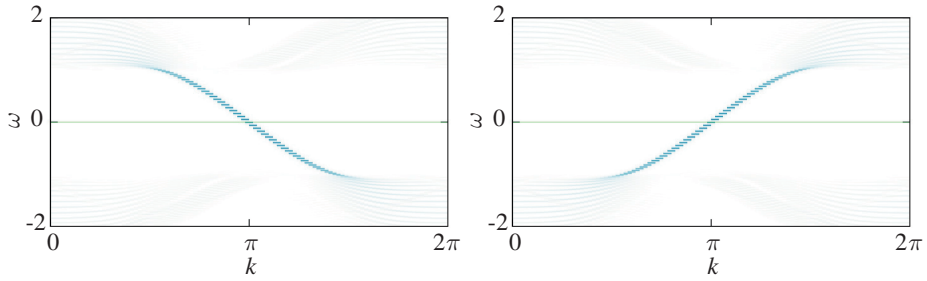


Abbildung 4.13: Spektralfunktion der Randzustände bei $\lambda = 0.2$ und $U = 2$, wobei hier der Spin aufgelöst wurde und nur die Spektralfunktion am unteren Rand der Probe gemessen wurde. Links: einen nach links laufender Strom für Spin-↑ Elektronen. Rechts: ein nach rechts laufender Strom für Spin-↓ Elektronen

Spin-Bahn-Kopplung von $\lambda = 0.2$ das obere und untere Band des Bulks, die durch eine Bandlücke getrennt sind. Auch hier ist klar erkennbar, dass die Bandlücke in der topologischen Phase mit steigender Wechselwirkungsstärke abnimmt. Je zwei Bänder verbinden die getrennten Bulkbänder. Diese Randzustände kreuzen sich aufgrund der Zeitumkehrsymmetrie in der effektiv eindimensionalen Brillouinzone am TRIM Punkt $k = \pi$. Die Randzustände sind topologisch geschützt bis zu einer kritischen Wechselwirkungsstärke, bei der der topologische Isolator in ein Halbmetall übergeht, in dem Moment in dem sich die Bänder berühren. Bei weiterer Erhöhung der Wechselwirkungsstärke öffnet sich die Bandlücke eines Mott Isolators.

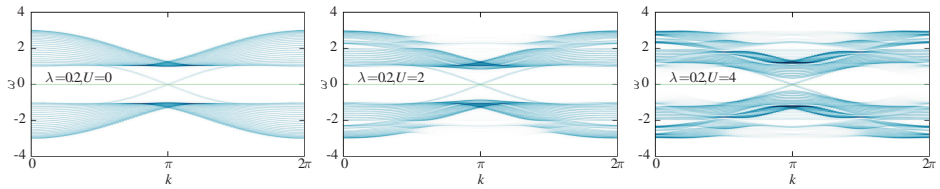


Abbildung 4.14: Spektralfunktion der Randzustände in der topologischen Isolatorphase bei $\lambda = 0.2$ und verschiedenen Wechselwirkungsstärken $U = 0, 2, 4$ (siehe Sternmarkierung in Abbildung 4.11) in der paramagnetischen Lösung. Mit steigender Wechselwirkungsstärke wird die Bandlücke des Bulks immer kleiner, aber die Randzustände bleiben.

4.2.3 Starke Wechselwirkung: XY Antiferromagnet

Für verschwindende Spin-Bahn-Kopplung $\lambda \to 0$ wird der Hamiltonian wieder SU(2) rotationssymmetrisch und man erhält für starke Wechselwirkungsstärke eine isotrope antiferromagnetische Néel-Ordnung. Endliche Spin-Bahn-Kopplung $\lambda \neq 0$ führt zu einem sogenannten *easy-plane* Antiferromagnet (XY-AFM) mit einem Ordnungsvektor in der xy-Ebene [123], was auch mit QMC [103, 106] und pseudofermionischer funktionaler Renormierungsgruppen [135] bestätigt wurde .
Um das magnetische Phasendiagram des Kane-Mele-Hubbard-Modells mit der VCA zu bestimmen, legt man nun antiferromagnetische Weissfelder, nach Gleichung (2.62) in x-, y- und z-Richtung an. Wir sehen uns in Abbildung 4.15 die funktionale Abhängigkeit des großkanonischen Potentials von den Weissfeldern in x- und z-Richtung an. Man sieht, dass in 4.15(a) das Potential rotationssymmetrisch ist und das energetische Minimum auf dem mit einer grünen Linie markierten Kreis liegt. Weissfelder in xy und yz-Richtung liefern exakt das selbe Bild. Man findet also unendlich viele entartete Zustände und damit einen isotropen Néel AFM, wie bereits zu Beginn des Abschnittes beschrieben. Für endliche Spin-Bahn-Kopplung wird die Entartung aufgehoben, und man findet ein Minimum entlang der x-Richtung mit $h_z = 0$, in Abbildung 4.15(b-d) als grüner Punkt markiert. Für moderate Spin-Bahn-Kopplung $\lambda < 0.2$ bei $U = 6$ findet man einen weiteren stationären Punkt, ein Sattelpunkt bei $h_x = 0$ und endlichem $h_z \neq 0$, in Abbildung 4.15(b) als blauer Punkt markiert. Dieser Sattelpunkt beschreibt eine physikalisch richtige Lösung, welche aber eine höhere Energie als das Minimum bei $h_x \neq 0$ besitzt. Man findet also für eine endliche Spin-Bahn Kopplung $\lambda > 0$ einen XY-AFM. Es ist leicht nachzuvollziehen, dass man einen XY-AFM erhält, wenn man sich den Grenzwert $U \to \infty$ ansieht. Man erhält ein effektives Spin-Modell [123]

$$\lim_{U\to\infty} \mathscr{H}_{KM} = J_1 \sum_{\langle ij\rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + J_\lambda \sum_{\langle\langle ij\rangle\rangle} (S_i^z S_j^z - S_i^x S_j^x - S_i^y S_j^y) \tag{4.10}$$

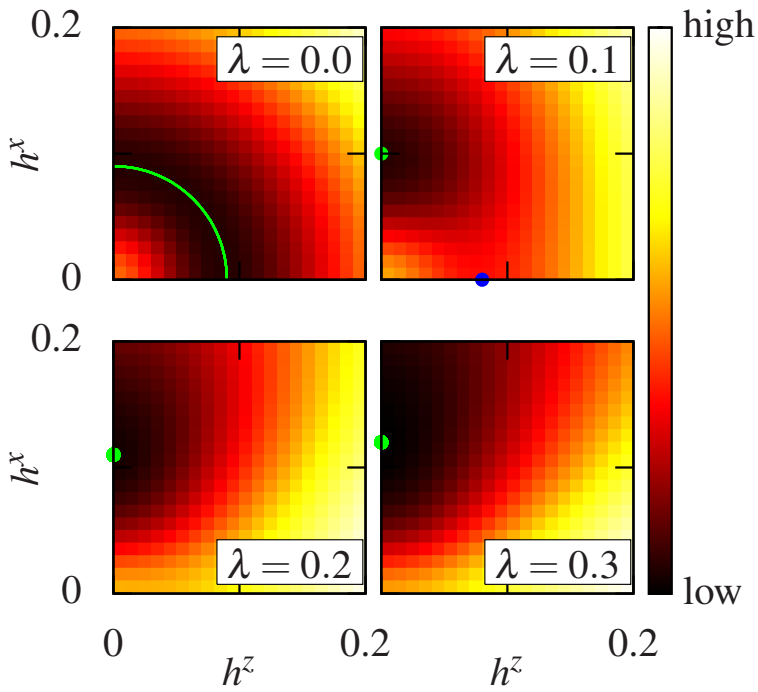


Abbildung 4.15: Großkanonisches Potential $\Omega(h^x, h^z)$ als Funktion der antiferromagnetischen Weissfelder h^x und h^z für verschiedene Stärken der Spin-Bahn-Kopplung λ. Alle Plots zeigen Ergebnisse des sechs-Platz Cluster bei $U = 6$. Die globalen Minima in Ω sind durch grüne Punkte (bzw. Linien) hervorgehoben. Für $\lambda = 0.1$(rechts oben) finden wir einen weiteren stationären Punkt (blau), einen Sattelpunkt bei endlichem $h^z \neq 0$, der aber energetisch ungünstiger ist.

wobei $J_1 = \frac{4t^2}{U}$ und $J_\lambda = \frac{4\lambda^2}{U}$ die Kopplungskonstanten sind. Der übernächste Nachbarterm wirkt auf jedes Untergitter, welches ein Dreiecksgitter ist, und frustiert das System teilweise. Die $S_i^x S_j^x$ und $S_i^y S_j^y$ Terme bevorzugen ferromagnetische Ordnung innerhalb ihres Untergitters, was mit einer antiferromagnetischen Ordnung im ursprünglichen Honigwabengitter kompatibel ist. Im Gegensatz dazu würde der Isingterm $S_i^z S_j^z$ eine antiferromagnetische Ordnung innerhalb des Untergitters bevorzugen, was einer Frustration des Honigwabengitters entspräche. Dieser Term konkurriert nun mit den antiferromagnetischen Termen. Daraus folgt, dass sich die rotationssymmetrische AFM Ordnung von $\lambda = 0$ für endliche $\lambda \neq 0$ in eine XY-AFM Ordnung wandelt, um der Frustration des Isingterms in z-Richtung auszuweichen. Dieses Ergebnis können wir durch die Untersuchung des Kane-Mele-Hubbard-Modells mit der VCA bestätigen, wobei wir als Referenzsystem sechs-, acht- oder zehn-Platz Cluster verwendet haben.

Die Bandlücke des TI geht aus der wechselwirkungsfreien Bandstruktur hervor und nimmt mit zunehmender Wechselwirkung immer weiter ab, bis die Bandlücke beim paramagnetischen Phasenübergang zum trivialen Isolator geschlossen ist. Der Phasenübergang zum XY-AFM findet aber bereits bei kleinerer Wechselwirkung statt, wodurch die Bandlücke beim Übergang vom TI zum XY-AFM nicht geschlossen wird sondern immer endlich bleibt. Die Randzustände verschwinden aber beim Übergang. Für den Fall verschwindender Spin-Bahn-Kopplung findet man also einen isotropen Néel-AFM Isolator mit allen Referenzclustern ab einer kritischen Wechselwirkungsstärke von $U_c = 3.8(L_c = 6), 2.4(L_c = 8), 2.9(L_c = 10)$. Für endliche Spin-Bahn-Kopplung findet man, dass eine AFM Ordnung innerhalb der xy-Ebene bevorzugt wird, das heißt man findet eine rotationssymmetrische Entartung in dieser Ebene.

4.2.4 Cluster-Effekte

Die Ergebnisse von schwacher bis starker Wechselwirkung für verschiedene Stärken der Spin-Bahn-Kopplung führen uns nun für verschiedene Cluster zu den Phasendiagrammen, die in Abbildung 4.16 zusammengefasst sind. Das Referenzsystem bestehend aus sechs-Platz Clustern liefert für Graphen nur bei $U = 0$ die halbmetallische Phase. Bereits eine infinitesimale Wechselwirkung führt zu einem Aufbrechen des Dirac-Punktes und führt zu einer Bandlücke. Dadurch entsteht eine nichtmagnetische Isolatorphase, die bis zu einer Wechselwirkungsstärke von $U = 3.8$ stabil ist und auch für endliche Spin-Bahn-Kopplung bis ca. $\lambda \simeq 0.075$ besteht. Für endliche Spin-Bahn Kopplung liefert das wechselwirkungsfreie Bild bereits einen topologischen Isolator, der bis zu mittleren Wechselwirkungsstärken $U \sim 4$ stabil ist. Oberhalb dieser Wechselwirkungsstärke findet man einen antiferromagnetischen Isolator, der für $\lambda = 0$ isotrop in allen Spinrichtungen ist, also ein Néel-AFM. Für endliche Spin-Bahn Kopplung $\lambda > 0$ wird die Magnetisierung aus der $z-$Richtung gedrängt und man erhält einen *easy-plane* XY-AFM, dessen Magnetisierung rotationssymmetrisch um die z-Achse ist.
Der acht-Platz Cluster, Abbildung 4.16(b), und der zehn-Platz Cluster (c) liefern qualitativ vergleichbare Phasendiagramme. Ohne Spin-Bahn-Kopplung erhält man eine halbmetallische Phase, die bis zum Übergang in den Néel-AFM Isolator überlebt. Dies geschieht bei $U = 2.4$ für den acht-Platz Cluster und bei $U = 2.9$ für den zehn-Platz Cluster. Eine endliche Spin-Bahn-Kopplung führt für kleine bis mittlere Wechselwirkungen zu einer topologischen Isolatorphase. Für große Wechselwirkungsstärken finden wir hier wie bereits für den sechs-Platz Cluster eine AFM Ordnung innerhalb der xy-Ebene. Lediglich die kritische Wechselwirkungsstärke für den magnetischen Phasenübergang variiert zwischen dem acht- und zehn-Platz Cluster. Der acht-Platz Cluster unterschätzt diesen Wert, da es mit seinen einzeln Gitterplätzen an den abstehenden Ärmchen, die jeweils nur einen nächsten Nach-

barn besitzen, die magnetische Ordnung überschätzt.

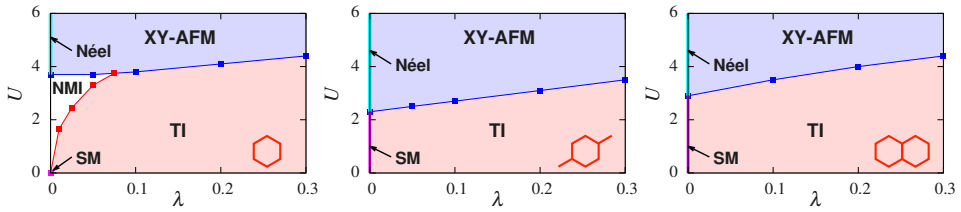


Abbildung 4.16: Phasendiagramme des Kane-Mele-Hubbard-Modells für verschiedene Clustergrößen. (a) sechs-Platz (b) acht-Platz (c) zehn-Platz Cluster. Man findet fünf verschiedene Phasen: Halbmetall (SM), topologischer Isolator (TI), nichtmagnetischer Isolator (NMI), antiferromagnetischer Isolator (Néel) und ein *easy-plane* Antiferromagnet (XY-AFM).

4.2.5 Phasendiagramm des Kane-Mele-Hubbard-Modells

Wir fassen die Ergebnisse der vorhergehenden Diskussion in einem qualitativen U-λ-Phasendiagramm zusammen und zeigen dieses in Abbildung 4.17. Die nichtmagnetische Isolatorphase die man nur auf dem sechs-Platz Cluster findet, ist wie bereits beschrieben nur ein numerisches Artefakt und wird nicht berücksichtigt. Startet man beim wechselwirkungsfreien ($U = 0$) Graphen ($\lambda = 0$) findet man eine halbmetallische Phase, die für kleine bis mittlere Wechselwirkungsstärken stabil ist. Sie geht direkt über in eine Néel-AFM Isolatorphase. Für endliche Spin-Bahn-Kopplung $\lambda > 0$ findet man eine topologische Isolatorphase, die für mittlere Wechselwirkungsstärken direkt in einen *easy-plane* XY-AFM übergeht. Die Phasengrenze zwischen topologischem und XY-AFM Isolator verläuft leicht steigend für zunehmende Kopplungsstärke. Dieses Phasendiagramm enthält alle Informationen die wir aus der detaillierten Analyse verschiedener Clustergrößen, sechs- acht- und zehn-Platz Cluster gewonnen haben.

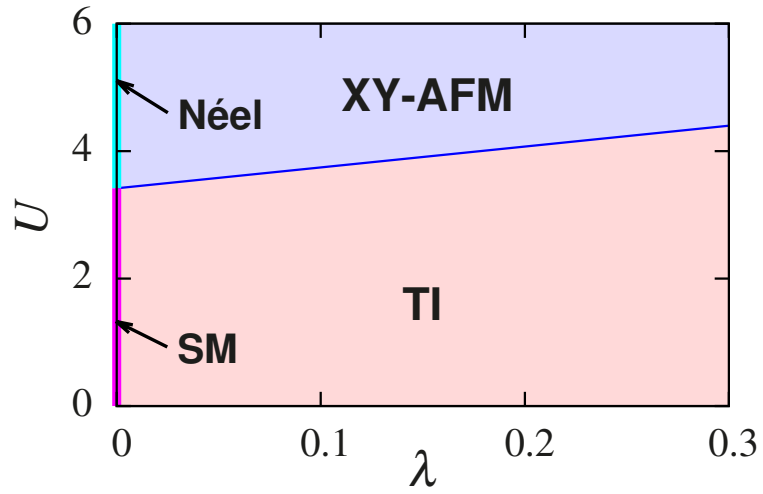


Abbildung 4.17: Schematisches Phasendiagramm des Kane-Mele-Hubbard-Modells. Man findet vier verschiedene Phasen: Halbmetall (SM), topologischer Isolator (TI), antiferromagnetischer Isolator (Néel) und ein *easy-plane* Antiferromagnet (XY-AFM).

4.3 Rashba-Spin-Bahn-Kopplung im Kane-Mele-Hubbard-Modell

Bisher wurde das Kane-Mele-Hubbard-Modell nur mit der intrinsischen Spin-Bahn-Kopplung betrachtet, die die U(1) Symmetrie des Systems erhält. Die VCA liefert, nach einer sorgfältigen und detaillierten Untersuchung mit verschiedenen Clustergrößen, ein artefaktfreies Phasendiagram, das mit dem bekannten Bild des Kane-Mele Hubbard-Modells übereinstimmt. In praktisch jedem experimentellen Aufbau und jeder Messung hat man aber den Einfluss eines Substrates oder eines extern angelegten elektrischen Feldes, die zu einer Rashba-Spin-Bahn-Kopplung führen. Deshalb muss dieses auch in theoretischen Modellen berücksichtigt werden, was bisher aus verschiedenen Gründen noch nicht geschah. Einerseits bricht die Rashba-Kopplung die verbliebene U(1) Symmetrie, die z.B. von QMC Methoden benötigt wird, um das bekannte Vorzeichenproblem zu umgehen. Der Rashba-Term hebt außerdem die Inversionssymmetrie des Modells auf, wodurch die Berechnung der topologischen Invariante für Wechselwirkende Systeme nicht mehr numerisch praktikabel ist. Diese Spin-Bahn-Kopplung kann, im Gegensatz zur intrinsischen Kopplung, keine topologische Phase erzeugen, sondern wirkt letzterer entgegen, da starke Rashba-Spin-Bahn-Kopplung die Bulkbandlücke schließt. Das vollständige Kane-Mele-Hubbard-Modell mit Rashba-Spin-Bahn-Kopplung, lautet dann

$$\mathscr{H}_{KMRH} = -t \sum_{\langle ij\rangle\,\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} + i\lambda \sum_{\langle\langle ij\rangle\rangle\,\alpha\beta} c^{\dagger}_{i\alpha} \nu_{ij} \sigma^{z}_{\alpha\beta} c_{j\beta}$$

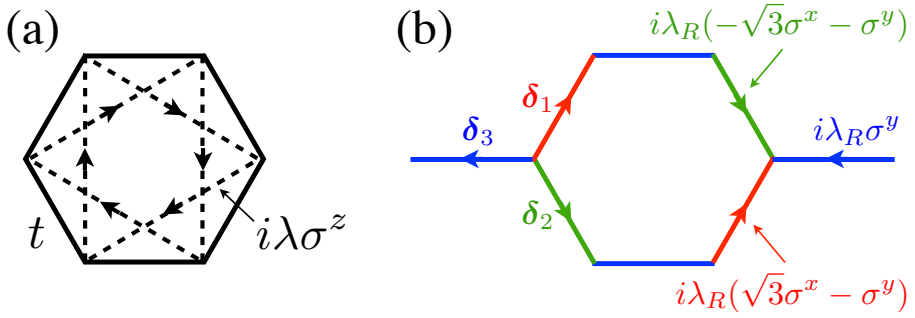


Abbildung 4.18: (a) Veranschaulichung des Hüpfterms t und der intrinsischen Kane-Mele Spin-Bahn-Kopplung $i\lambda\sigma^z$. (b) Veranschaulichung der nächste Nachbar Vektoren $\delta_i (i = 1, 2, 3)$ und der Rashba-Spin-Bahn-Kopplung $i\lambda_R$ mit der jeweiligen Abhängigkeit des Spins von der Richtung des Hüpfens δ_i.

$$+ i\lambda_R \sum_{\langle ij\rangle\,\alpha\beta} c^\dagger_{i\alpha}(\boldsymbol{\sigma}_{\alpha\beta} \times \boldsymbol{d})_z \, c_{j\beta} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma} \; . \tag{4.11}$$

mit den bekannten Termen für das nächste Nachbar Hüpfen t, der Hubbard-Wechselwirkung U und dem chemischen Potential μ, sowie der bereits eingeführten Kane-Mele Spin-Bahn-Kopplung λ. Zusätzlich dazu wurde hier die Rashba-Spin-Bahn-Kopplung λ_R eingeführt, deren Kopplung des Spins je nach Richtung des Hüpfens in der xy-Ebene variiert. Die Kopplung des Rashba-Terms durch die Paulimatrizen ist in Abbildung 4.18(b) schematisch dargestellt. Wir finden neben der aus dem Kane-Mele-Modell bereits bekannten topologischen und der XY-AFM Isolatorphase eine topologische Halbmetall-Phase, ein Metall sowie einen Bereich, in dem eine Bandlücke existiert, wir aber keine magnetische Ordnung finden können. Des weiteren finden wir, mit dem acht-Platz Cluster als Referenzsystem, eine weitere interessante Phase, eine metallische Phase mit antiferromagnetischer Ordnung, in einem Bereich mittlerer Wechselwirkung und starker Rashba-Kopplung.

4.3.1 wechselwirkungsfreie Bandstruktur

Der nichtwechselwirkende Fall der Rashba-Spin-Bahn-Kopplung im Kane-Mele-Modell wurde bereits von Kane und Mele in ihren Arbeiten behandelt [18, 19]. Der Rashba-Spin-Bahn-Kopplungsterm bricht die Spiegelsymmetrie $z \to z$ sowie die Inversionssymmetrie des KMH-Modells, was dazu führt, dass die Spin Entartung des Systems aufgehoben wird und man vier Bänder erhält, wie in Abbildung 4.19 gezeigt.
Kane und Mele fanden eine topologische Isolatorphase, die durch die intrinsische Spin-Bahn-Kopplung λ erzeugt wird und die stabil bleibt gegenüber der Rashba-Kopplung bis $\lambda_R = 2\sqrt{3}\lambda$. Eine weitere Verstärkung der Rashba-Kopplung führt zu einer weiteren Verbiegung der Bänder, die dann

auch überlappen, so dass man ein triviales Metall erhält.
Da Kane und Mele aber den Effekt der Spin-Bahn-Kopplung auf Graphen beschreiben wollten, wurden nur sehr kleine Werte der Kopplungen $\lambda = 0.03t$ und $0.06t$ untersucht. Inspiriert von einigen verschiedenen mittlerweile vorgeschlagen Systemen [85–92], die den Quanten-Spin-Hall Zustand auf dem Honigwabengitter realisieren könnten, untersuchen wir nun intrinsische Kopplungsstärken, die deutlich über der von Kane und Mele liegen. Wir finden für $\lambda = 0.2$, zunächst einen topologischen Isolator für $\lambda_R < 0.57$, mit den in Abbildung 4.19(a-d) gezeigten Dispersionen. Ab dieser Stärke der Kopplung werden die Bänder so stark verbogen, dass das Valenz und das Leitungsband für verschiedene Wellenvektoren überlappen, es aber weiterhin eine direkte Bandlücke für jeden einzelnen Impuls der gesamten Brillouin-Zone gibt, siehe Abbildung 4.19(e). Das heißt, dass sich das Leitungs- und das Valenzband weder berühren noch sich schneiden. Das ist der Grund warum die topologische Invariante, die für $U = 0$ berechnet wurde, diesen Bereich auch als topologischen Isolator benannt hat. Bei einer kritischen Kopplungsstärke von $\lambda_R = 2\sqrt{3}\lambda$ wird die direkte Bandlücke bei K geschlossen und man erhält ein triviales Metall, Abbildung 4.19(f). Wir finden metallische Randzustän-

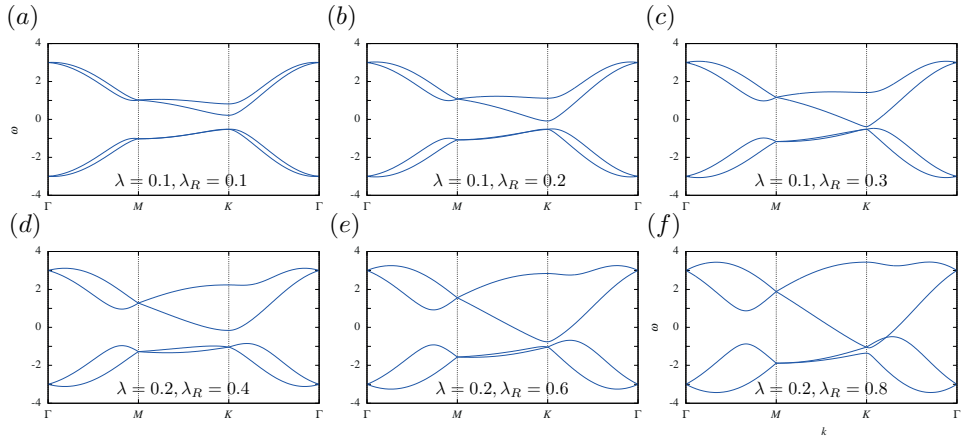


Abbildung 4.19: Bandstruktur des wechselwirkungsfreien Kane-Mele-Hubbard-Modells mit Rashba-SOC für $\lambda = 0.1, 0.2$ und verschiedene Rashba-Kopplungen. Die Rashba-Kopplung führt zu einer Aufspaltung der Spinentartung, so dass man vier sichtbare Bänder erhält. Die Bänder werden so stark verbogen, dass man für $\lambda_R > 2\sqrt{3}\lambda$ ein topologisch triviales Metall erhält. Für kleinere Rashba-Kopplung ergibt die Berechnung der topologischen Invariante eine topologische Phase an. Im unteren mittleren Bild für $\lambda = 0.2, \lambda_R = 0.6$ sind die Bänder bereits so stark verbogen, dass das Leitungsband und das Valenzband für verschiedene Wellenvektoren überlappen, man also keinen Isolator mehr hat. Ein Übergang zum topologisch trivialen Metall erfolgt erst im letzten Bild. Mehr Details zu den einzelnen Phasen im Text von Abschnitt 4.3.2.

de bis zu der kritischen Kopplungsstärke von $\lambda_R = 2\sqrt{3}\lambda$, worüber wir eine intermediäre Phase benennen, das topologische Halbmetall, bei dem in der direkten Bandlücke immer noch Randzustände existieren, die Valenz- und

Leitungsband miteinander verbinden. Die Randzustände sind in Abbildung 4.20 gezeigt, wobei man bei $\lambda_R = 0.6$ noch den Randzustand erkennen kann und im letzten Bild bei $\lambda_R = 0.8$ das Valenz- und das Leitungsband einfach überlappen und kein solcher Randzustand mehr existiert. Möglicherweise

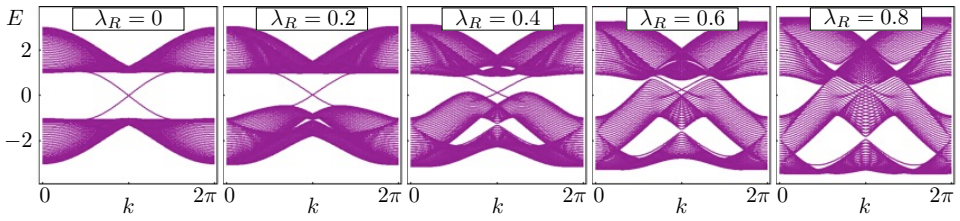


Abbildung 4.20: Einteilchen Spektrum berechnet mit ED auf der Zylindergeometrie für $U = 0, \lambda = 0.2$ und verschiedene Werte von λ_R. Die Spektralfunktionen interpolieren zwischen einem topologischen Isolator ($\lambda_R = 0, 0.2$ und 0.4) und einer metallischen Phase ($\lambda_R = 0.8$). Dazwischen finden wir bei $\lambda_R = 0.6$ einen lückenlosen topologischen Halbleiter der aber in der gesamten Brillouin-Zone eine direkte Bandlücke besitzt.

tritt diese topologische Halbmetallphase für alle Stärken der intrinsischen Spin-Bahn-Kopplung auf, wir waren erst ab einer Stärke von $\lambda > 0.1$ in der Lage diese Phase zu identifizieren. Sie liegt immer unterhalb der topologischen Phasengrenze $\lambda_R = 2\sqrt{3}\lambda$ und nimmt mit zunehmender intrinsischer Kopplung einen immer größeren Bereich ein, wie in dem Phasendiagramm in Abbildung 4.21 gezeigt wird.

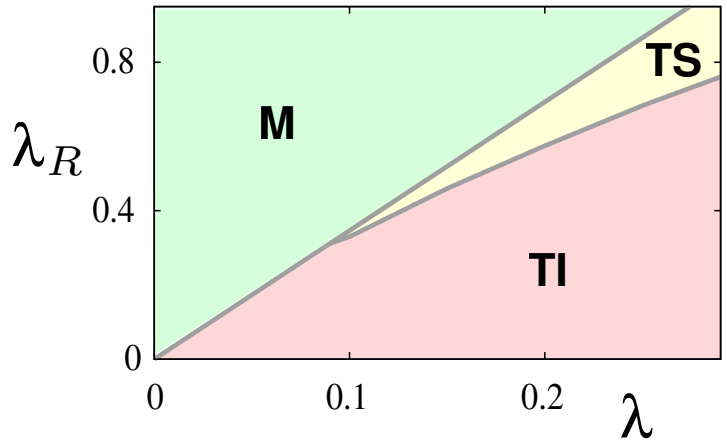


Abbildung 4.21: Das $\lambda_R - \lambda$ Phasendiagramm des wechselwirkungsfreien KMRH-Modells enthält die TI, die Metall (M) und die topologische Halbleiter (engl. *topological semiconductor* TS) Phase.

4.3.2 Schwache bis leichte Wechselwirkungsstärke

Für schwache intrinsische Spin-Bahn-Kopplung $\lambda < 0.1$ finden wir nur eine topologische Isolatorphase und für $\lambda_R > 2\sqrt{3}\lambda$ ein Metall. Beide Phasen überleben bis zu mittleren Wechselwirkungsstärken. Wenn wir das Phasendiagramm für eine deutlich größere intrinsische Spin-Bahn-Kopplung von $\lambda = 0.2$ genauer untersuchen, finden wir drei verschiedene Phasen für $U = 0$, die auch endliche Wechselwirkungsstärken überleben: einen topologischen Isolator (TI), ein topologisches Halbmetall (TS) und ein Metall (M), siehe Abbildung 4.21. Die Ausdehnung der drei Phasen werden wie im wechselwirkungsfreien Fall über die Einteilchenbandlücke der lokalen Zustandsdichte und die Existenz der Randzustände definiert. Der topologische Isolator hat sowohl eine Bandlücke im Probeninneren, als auch metallische Randzustände. Im topologischen Halbmetall ist die Bandlücke der lokalen Zustandsdichte im Probeninneren bereits geschlossen, es existiert aber eine direkte Bandlücke für jeden Wellenvektor der Brillouinzone, das heißt das Valenz- und das Leitungsband überlappen nur für verschiedene Wellenvektoren. In dieser direkten Bandlücke sind aber weiterhin die Randzustände vorhanden. Beim Übergang zum Metall berühren sich dann Valenz und Leitungsband und die Randzustände verschwinden. Der topologische Isolator im Kane-Mele-

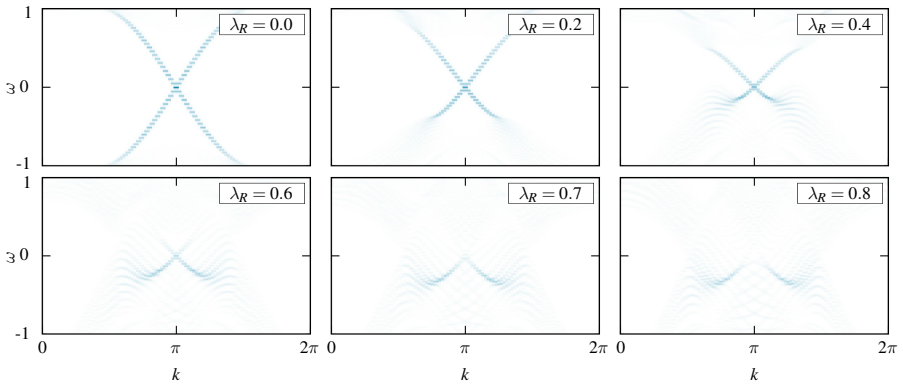


Abbildung 4.22: Spektralfunktion berechnet in der Zylindergeometrie um die Randzustände zu betrachten bei $U = 2$ und $\lambda = 0.2$. Es wurde nur das spektrale Gewicht der Randplätze der Probe gezeigt. Für $\lambda < 0.57$ (obere Reihe) befindet sich das System in der TI Phase, das Probeninnere hat eine Bandlücke, die am Rand durch metallische Zustände überbrückt wird. Für $\lambda_R = 0.6$ (untere Reihe, links) erhält man das topologische Halbmetall mit Randzuständen. Für $\lambda_R > 2\sqrt{3}\lambda \simeq 0.69$ (untere Reihe, Mitte und rechts) erhält man ein triviales Metall, es existiert kein topologisch geschütztes Band mehr, das alleine oberes und unteres Band verbindet.

Hubbard-Modell mit Rashba-Spin-Bahn-Kopplung kann im Wechselwirkenden nicht mehr über die topologische Invariante berechnet werden, wie sie in Abschnitt 4.2.2.1 vorgestellt wurde, denn die Inversionssymmetrie ist nicht mehr gegeben. Es besteht aber weiterhin die Möglichkeit, die Phase über die

Randzustände zu identifizieren. In Abbildung 4.22 ist die Spektralfunktion der obersten und untersten Einheitszellen der Probe gezeigt, das heißt das spektrale Gewicht des Bulks wurde ausgeblendet, um die Randzustände einfacher identifizieren zu können. In der topologischen Isolatorphase 4.22(obere Reihe) können die Randzustände einfach und klar erkannt werden, sie verbinden das Valenz und Leitungsband, die noch als Schatten erkennbar sind. Das spektrale Gewicht des metallischen Bandes, zwischen Valenz und Leitungsband, dominiert das Bild, daraus kann man ablesen, dass die Randzustände sehr stark am Rand der Probe lokalisiert sind. Mit zunehmender Rashba-Kopplungsstärke verliert das metallische Band immer mehr an Gewicht, was damit verbunden ist, dass die Randzustände in das Probeninnere verdrängt werden. Dennoch sind im topologischen Halbmetall in Abbildung 4.22(untere Reihe, links) noch zwei Bänder erkennbar, die spektrales Gewicht auf sich vereinen und das Valenz und Leitungsband verbinden und sich im TRIM-Punkt schneiden. Im Metall, siehe Abbildung 4.22(untere Reihe, Mitte und rechts) verteilt sich das spektrale Gewicht über verschiedene Bänder, es existiert kein Randzustand mehr.
In Abbildung 4.23 sind die Randzustände des Systems dargestellt für $\lambda_R = 0.6$, im wechselwirkungsfreien befindet sich das System in der topologischen Halbmetallphase. Wird nun die Wechselwirkung aufgedreht, verringert sich auch hier zunächst die direkte Bandlücke im Probeninneren, siehe Abbildung 4.23(a+b). Die Randzustände existieren weiterhin. Eine weitere Verstärkung der Wechselwirkung bewirkt, dass die topologische Phase zerstört wird und in einer Mott-Isolator Phase die Bandlücke mit zunehmender Wechselwirkung global aufgeht, siehe Abbildung 4.23(c+d).

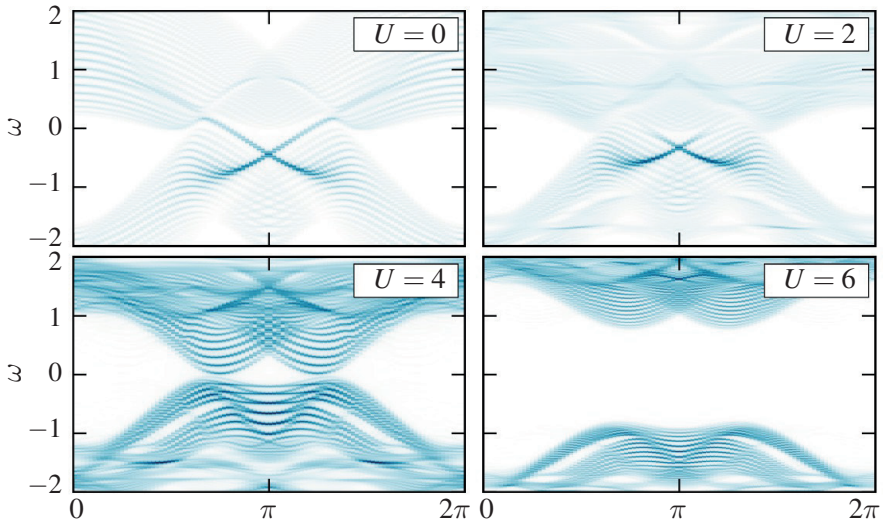


Abbildung 4.23: Spektralfunktion berechnet in der Zylindergeometrie, um die Randzustände der topologischen Halbmetall Phase zu zeigen. Die Messung zeigt nur das spektrale Gewicht der obersten und untersten Einheitszelle der Probe. Das System hat keine globale Bandlücke, aber für jeden Wellenvektor existiert eine, im Impulsraum lokale, Bandlücke für $U = 0,2$. Für kleine Wechselwirkung befindet sich das System in der topologischen Halbleiterphase, da in der Bandlücke noch ein Randzustand existiert, der diese Bandlücke leitend verbindet. Für $U = 0,2$ ist das Gewicht an den Randzuständen konzentriert. Für $U \simeq 4$ verteilt sich das Gewicht auch an den Randplätzen über alle Pole des Bulkspektrums, es existieren keine Randzustände mehr und das System befindet sich in einer trivialen Isolatorphase.

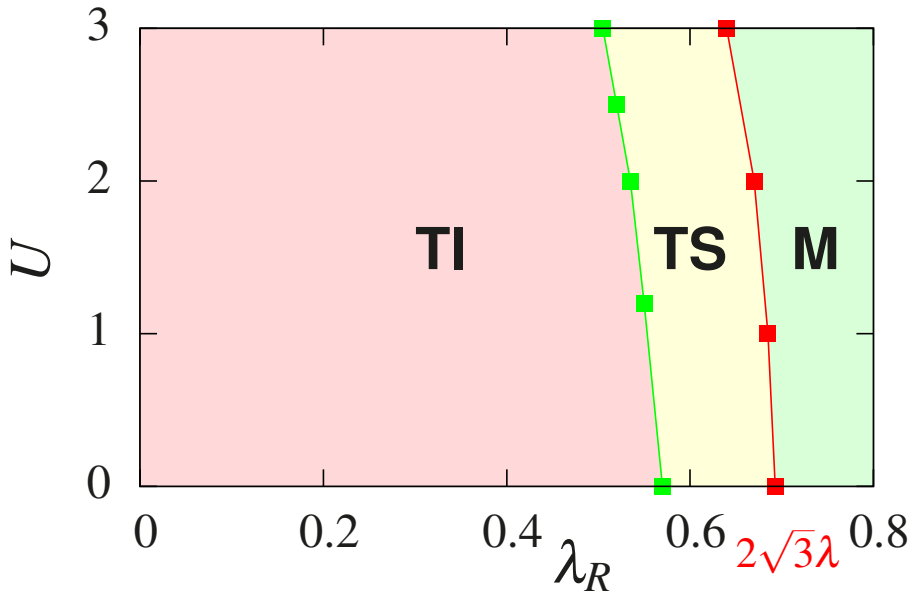


Abbildung 4.24: $U - \lambda_R$ Phasendiagramm für $\lambda = 0.2$ im nichtmagnetischen Bereich kleiner Wechselwirkung: Die TS Phase existiert auch in Gegenwart endlicher Wechselwirkung.

4.3.3 Starke Wechselwirkung: magnetische Ordnung

Die Betrachtung der magnetischen Ordnung im Kane-Mele-Hubbard-Modell für $\lambda_R = 0$, ergab eine XY-AFM Isolator Phase im starkwechselwirkenden System. Wird nun die Rashba-Kopplung als schwache Störung betrachtet, muss die magnetische Ordnung unverändert bestehen. Deshalb erwarten wir für schwache Rashba-Spin-Bahn-Kopplung weiterhin einen XY-AFM Isolator. Für starke Spin-Bahn-Kopplung ist eine spirale magnetische Ordnung sehr wahrscheinlich, denn der Spin-Hamiltonian, den man im starkwechselwirkenden Grenzfall $U \to \infty$ erhält, enthält Dzyaloshinskii-Moriya Terme [135]. Erst kürzlich wurde in einem Material, das einen ähnlichen effektiven Spin-Hamiltonian mit DM-Termen besitzt, eine spiralmagnetische Ordnung gefunden [135–137]. Dabei handelt es sich um ein Kane-Mele-artiges Modell [90] zur Beschreibung von Na_2IrO_3, das eine multidirektionale Spin-Bahn-Kopplung besitzt und in Abschnitt 4.4 behandelt wird.

4.3.3.1 Antiferromagnet

Wir beginnen mit der Analyse der magnetischen Ordnung des sechs-Platz Cluster als Referenzsystem. In Abbildung 4.25 ist die funktionale Abhängigkeit des großkanonischen Potentials von den antiferromagnetischen Weissfeldern h_x und h_y gezeigt. Die Rotationssymmetrie der XY-AFM Ordnung, die wir bereits ohne Rashba-Kopplung gefunden haben, bleibt auch für endliche Rashba-Spin-Bahn-Kopplungen bestehen. Das Minimum von $\Omega(h_x, h_y)$ liegt auf einem perfekten Kreis und wurde in Abbildung 4.25 mit einer grünen Linie markiert. Mit zunehmender Rashba-Kopplung wird der Kreis immer kleiner, das heißt, das Weissfeld der stationären Lösung geht gegen Null. Bei einer intrinsischen Spin-Bahn-Kopplung von $\lambda = 0.1$ verschwindet die antiferromagnetische Ordnung für $\lambda_R = 0.3$. Eine stärkere intrinsische Spin-Bahn-Kopplung $\lambda = 0.2$ stabilisiert die XY-AFM Phase bis $\lambda \sim 0.45$. Die Untersuchung des acht- und zehn-Platz Clusters als Referenzsystem liefert hierbei deutliche Abweichungen. Für das Kane-Mele-Modell ohne Rashba-Spin-Bahn-Kopplung liefern auch diese beiden Cluster eine rotationssymmetrische XY-AFM Isolatorphase. Die Anisotropie der Rashba-Kopplung bevorzugt aber eine diskrete Richtung der Magnetisierung, für die magnetische Ordnung bei endlichen Werten der Kopplung. Dies ist in der funktionalen Abhängigkeit des großkanonischen Potentials, von den Weissfeldern h_x und h_y, in Abbildung 4.26 exemplarisch für den acht-Platz Cluster gezeigt. Dreht man die Orientierung des Clusters, so wird auch die funktionale Abhängigkeit des großkanonischen Potentials in der xy-Ebene gedreht. Diese Anisotropie der magnetischen Ordnung rührt von der Anisotropie des Rashba-Termes her. In der schematischen Darstellung des Rashba-Terms in Abbildung 4.18(b) sind exakt die Kopplungsterme gezeigt, die auf dem acht-Platz Cluster in die exakte Diagonalisierung eingehen. Dabei zählen wir vier

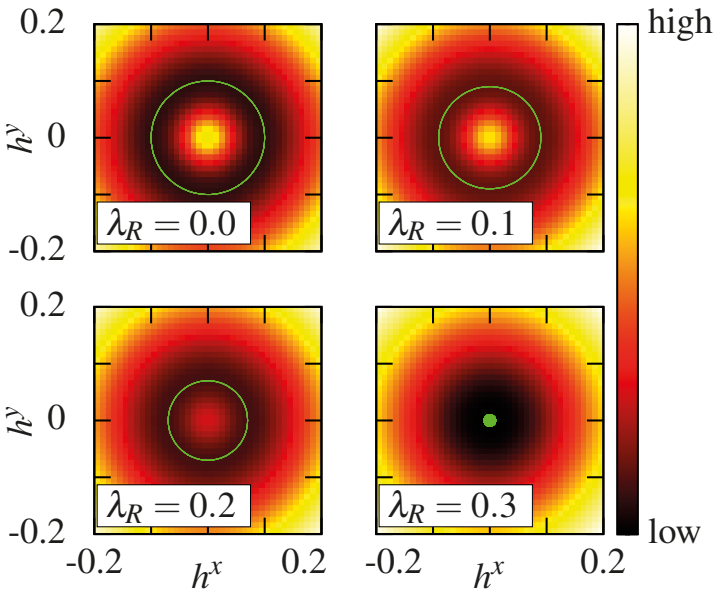


Abbildung 4.25: Großkanonisches Potential als Funktion der antiferromagnetischen Weissfelder in $x-$ und $y-$Richtung auf dem sechs-Platz Cluster. Die Minima(grün hervorgehoben) sind entartet und die Kurve ist rotationssymmetrisch in der xy-Ebene, d.h. man erhält einen XY-AFM. Für zunehmendes Rashba-SOC nimmt der Radius der stationären Punkte immer weiter ab bis $h_x = h_y = 0$ und kein stationärer Punkt mit endlichem Weissfeld mehr existiert.

vertikale Hüpfen (blau) und nur je zwei diagonale Hüpfen (rot und grün). Genau wie in Abschnitt 4.1 für die Dispersion von Graphen beschrieben werden jetzt auch hier die Rashba-Kopplungsterme durch die Wechselwirkung auf dem Cluster renormiert, während die Kopplungsterme zwischen den Clustern keiner Renormierung durch U unterliegen, also wechselwirkungsfrei in die Berechnung eingehen. Jeder Rashba-Kopplungsterm bringt eine Frustration mit sich, die letztendlich die magnetische Ordnung unterdrückt. Da diese Frustration nun einer ungleichmäßigen Renormierung, durch die Wechselwirkung U auf dem Cluster unterworfen ist, wirkt sie sich unterschiedlich stark auf die Magnetisierung aus. Dies führt zu einem Brechen der Rotationssymmetrie des XY-AFM auf dem acht-Platz Cluster. Auf dem zehn-Platz Cluster findet man den selben Effekt und es kann analog diskutiert werden. Auf dem zehn-Platz Cluster findet man drei vertikale Hüpfen (blau) und je vier diagonale Hüpfen (rot und grün), wenn man die schematische Darstellung 4.18(b) auf das zehn-Platz überträgt.

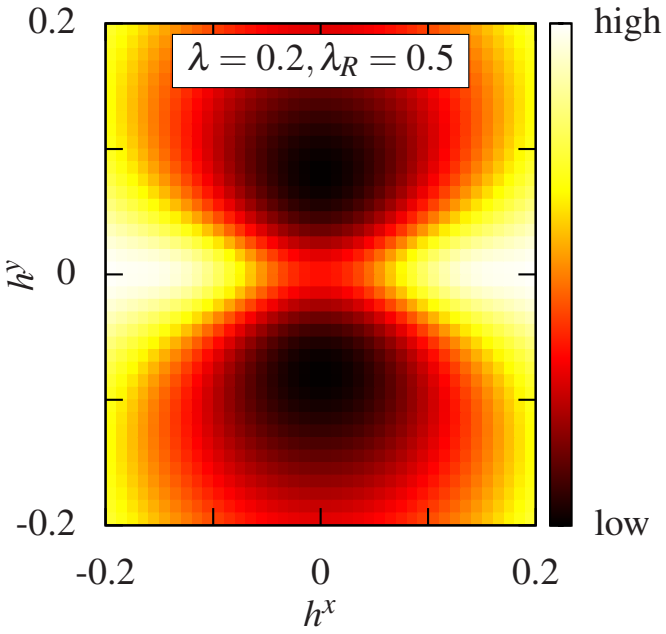


Abbildung 4.26: Großkanonisches Potential als Funktion der antiferromagnetischen Weissfelder h^x und h^y auf dem acht-Platz Cluster. Die rotationssymmetrische Entartung ist aufgehoben, da der Cluster durch seine Geometrie die Symmetrie des Gitters bricht. Dreht man den Cluster im Gitter um $\pi/3$ so erhält man auch ein Minimum, das in der xy-Ebene entsprechend gedreht ist.

4.3.3.2 Antiferromagnetisches Halbmetall

Das Referenzsystem bestehend aus acht-Platz Clustern liefert ein weiteres interessantes Ergebnis. Der acht-Platz Cluster zeigt eine sehr starke Tendenz zu antiferromagnetischen Ordnung, die sich bereits in einer relativ kleinen kritischen Wechselwirkungsstärke $U_c = 2.4$ in Graphen gezeigt hat. Im KMH-Modell mit Rashba-Spin-Bahn-Kopplung zeigt sich diese Ausprägung wieder, so ist die AFM Phase auf dem acht-Platz Cluster bei $\lambda = 0.2$ und einer Wechselwirkungsstärke von $U = 8$ bis zu einer Rashba-Kopplung von $\lambda_R = 1.36$ stabil. Im Vergleich: der sechs-Platz Cluster bildet die AFM Ordnung nur bis $\lambda_R = 0.46$ aus. Der zehn-Platz Cluster nur bis $\lambda_R = 0.43$. Der magnetische Ordnungsvektor ist $\vec{Q} = \vec{K}$.
Sieht man sich die Auswirkung des Rashba-Termes an, so erkennt man, dass dieser die Bänder sehr stark verbiegt. Dies führt zum Übergang vom topologischen Isolator zum Metall auch im wechselwirkungsfreien Fall. Das Valenzband und das Leitungsband werden so stark verbogen, dass diese zunächst für verschiedene Wellenvektoren überlappen, was zur topologischen Halbmetallphase führt. Für Rashba-Kopplung, die stärker als $\lambda_R = 2\sqrt{3}$ ist, berühren bzw. schneiden sich die beiden Bänder, wobei der Überlapp mit zunehmender Kopplungsstärke immer weiter zunimmt. Dies führt dazu, dass die metallische Phase für stärkere Rashba-Kopplung auch gegen Wechselwirkung stabiler wird, die kritische Wechselwirkungsstärke die zum Isolator führt also immer größer wird. Unter dem Einfluss der Wechselwirkung werden jetzt die sich überlappenden Bänder wieder voneinander getrennt, so dass ähnlich zur topologischen Halbmetallphase wieder eine Bandlücke für jeden einzelnen Wellenvektor der Brillouinzone entsteht, in diesem Fall aber keine metallischen Randzustände existieren.
Die metallische Phase hat hier also den Ursprung nicht in einem teilgefüllten Band, sondern in dem Überschneiden zweier Bänder. Dieser Umstand, zusammen mit der Stabilität der AFM Ordnung auf dem acht-Platz Cluster führt dazu, dass man eine metallische Phase mit antiferromagnetischer Ordnung findet. Die Metallizität ist in Abbildung 4.27 dargestellt, (a) zeigt die Fermifläche und (b) die Spektralfunktion des Systems in der AFM Metallphase. An der Fermifläche sieht man auch wieder die Renormierung der Dispersion, aufgrund der Anisotropie des Clusters, wie bereits für Graphen in Abschnitt 4.1 beschrieben. Man findet eine Elektronentasche um $\vec{K}$ herum, d.h. das Band, das die Fermienergie um den K-Punkt schneidet, hat bei $\vec{K}$ ein Minimum. Innerhalb der Brillouinzone liegen noch vier weitere Lochtaschen, die die Fermienergie aber von unten durchdringen. Dies lässt sich aus der Spektralfunktion (b) entlang des Pfades $K \to \Gamma \to M \to K \to A$, der im Fermiflächenplot (a) eingezeichnet ist, ablesen.
Man kann auch klar erkennen, dass die Fermifläche kaum *Nesting* bietet, da zwei benachbarte Taschen um K und K', die um den magnetischen Ordnungsvektor zueinander verschoben wären, genau gespiegelt sind. Die anti-

ferromagnetische Ordnung ist hier also nicht die treibende Kraft, die den Metall-Isolator Übergang treibt.

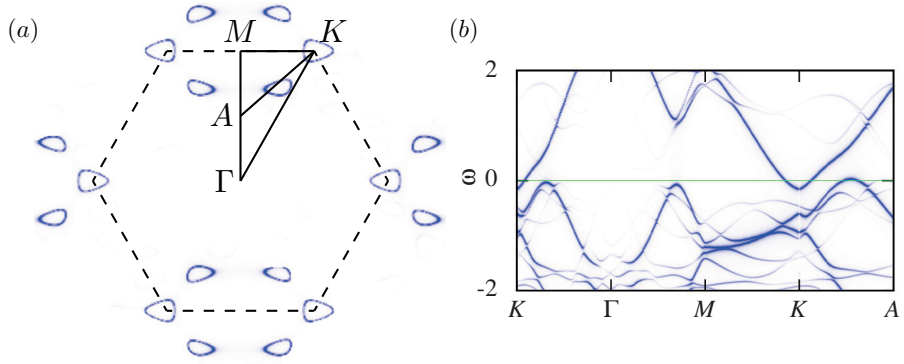


Abbildung 4.27: (a) Fermifläche in der AFM Metall Phase ($\lambda = 0.2, \lambda_R = 0.6$ und $U = 3.3$). (b) Einteilchenspektralfunktion $A(\mathbf{k}, \omega)$ in der AFM Metall Phase für periodische Randbedingungen, entlang der Trajektorie die in (a) gezeigt ist.

Es ist jedoch anzumerken, dass diese exotische Phase wahrscheinlich lediglich ein Artefakt des acht-Platz Clusters ist und durch die spezielle Anisotropie mit den einzelnen Randplätzen an den Ärmchen des Clusters hervorgerufen wird. Dennoch ist es interessant, dass eine AFM Ordnung in solche einem halbmetallischen System bestehen kann.

4.3.4 Clusterabhängigkeit der Ergebnisse

Bisher wurden einzelne Phasen und Aspekte des Kane-Mele-Hubbard-Modells unter dem Einfluss der Rashba-Spin-Bahn-Kopplung beleuchtet. Wir fassen die Ergebnisse für $\lambda = 0.2$ in den Phasendiagrammen zusammen, die in Abbildung 4.28 für (a) der sechs-Platz, (b) der acht-Platz und (c) der zehn-Platz Cluster gezeigt werden. Alle Cluster liefern übereinstimmend in ihrem Phasendiagramm eine topologische Isolatorphase, die von der intrinsischen Spin-Bahn-Kopplung herrührt. Die TI Phase ist auch in allen Referenzsystemen von der Ausdehnung im Phasenraum sehr ähnlich. Das wechselwirkungsfreie Phasendiagramm ist natürlich in allen Clustern identisch, da die VCA clusterunabhängig in diesem Grenzfall exakt wird. Deshalb findet man auch in allen Phasendiagrammen die topologischen Halbmetallphase sowie das Metall. Auch die Phasengrenze des Metalls zu starker Wechselwirkung, die eine Bandlücke öffnet ist in allen Referenzsystemen nahezu identisch und steigt ab $\lambda_R = 0.6$ linear an, was von der Bandverbiegung durch die Rashba-Kopplung bewirkt wird. Die Phasengrenze, zwischen der topologischen Halbmetallphase und dem Metall, wurde nur mit dem acht-Platz Cluster bestimmt, da sich nur mit diesem Randzustände eines Zylinders mit Zick-Zack-Kante untersuchen lassen. Auch im Falle verschwindender Rashba-Kopplung $\lambda_R = 0$ findet man global einen, um die z-Achse rotationssymmetrischen, XY-AFM

Isolator. Für starke Wechselwirkungen unterscheiden sich die Referenzsysteme, was durch die speziellen Eigenschaften der Cluster in der ED zustande kommt. Der sechs-Platz Cluster findet eine XY-AFM Isolatorphase oberhalb von $U \gtrsim 4$ bis zu einer Rashba-Kopplungsstärke von $\lambda_R \lesssim 0.46$.
Der zehn Platz Cluster liefert eine AFM Phase in etwa dem gleichen Gebiet, oberhalb einer Wechselwirkungsstärke von $U \gtrsim 4$ bis zu einer Rashba-Kopplungsstärke von $\lambda_R \lesssim 0.43$. Nur der Grenzfall verschwindender Rashba-Kopplung $\lambda_R = 0$ liefert eine, um die z-Achse rotationssymmetrische, XY-AFM Ordnung. Endliche Rashba-Kopplung bringt hier eine diskrete Richtung der Magnetisierung hervor, was aber vermutlich ein Clusterartefakt ist, wie im vorhergehenden Abschnitt beschrieben wurde.
Der acht-Platz Cluster liefert die außergewöhnlichsten Resultate. Die AFM Ordnung ist, wie auch auf dem zehn-Platz Cluster für endliche Rashba-Kopplung nicht mehr rotationssymmetrisch um die z-Achse, sondern weist eine diskrete Richtung der Magnetisierung auf. Dieses Cluster besitzt die stärkste Tendenz zu antiferromagnetischer Ordnung, was sich in einer etwas niedrigeren kritischen Wechselwirkungsstärke wiederspiegelt, hier bereits ab $U \gtrsim 3$. Außerdem überlebt die AFM Ordnung sehr starke Rashba-Kopplung, sie bricht erst bei $\lambda_R \sim 1.4$ zusammen. Durch diese Stabilität der AFM Ordnung gegen die Rashba-Kopplung kommt es zu einer weiteren Phase, die metallische AFM Phase. Diese ist zwar möglicherweise nur ein Artefakt dieses Clusters, zeigt aber die Möglichkeit auf, dass mit Spin-Bahn-Kopplung stark verbogene Bänder, gepaart mit einer räumlichen Anisotropie, eine antiferromagnetische Phase existieren kann. Wir nehmen aber für das Kane-Mele-Hubbard-Modell mit Rashba-Spin-Bahn-Kopplung an, dass diese Phase in diesem Kontext keine physikalische Bedeutung hat.

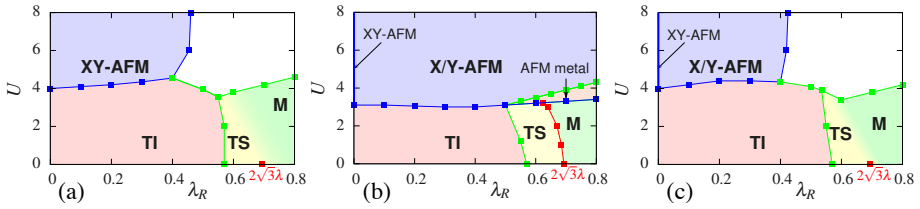


Abbildung 4.28: U-λ_R Phasendiagramme des Kane-Mele-Hubbard-Modells für $\lambda = 0.2$. Untersucht wurden der (a) sechs-, (b) acht- und (c) zehn-Platz Cluster. Neben der TI und XY-AFM Phase finden wir ein Metall (grün) und einen topologischen Halbleiter (gelb), der durch leitende Randzustände charakterisiert wird und die lokale Zustandsdichte keine Bandlücke besitzt. Der Übergang von der topologischen zu der trivialen metallischen Phase findet bei $U = 0$ bei $\lambda_R = 2\sqrt{3}\lambda$ statt (gelb nach grün)

4.3.5 Phasendiagramm des Kane-Mele-Rashba-Hubbard-Modells

Bisher haben wir gesehen, dass die unterschiedlichen Eigenschaften der Cluster sich durch die exakte Diagonalisierung, bei der die Korrelationen nur

innerhalb der Cluster stattfinden, sehr stark auf die Ergebnisse der VCA auswirken. Wir fassen jetzt die Ergebnisse der drei verschiedenen Cluster, die als Referenzsysteme gedient haben, zu einem effektiven artefaktfreien Phasendiagramm in Abbildung 4.29 zusammen, das qualitativ und mit kleinen Anpassungen für intrinsische Spin-Bahn-Kopplungen im Bereich $0 < \lambda < 0.3$, möglicherweise auch für noch stärkeres λ<++>, gültig ist. Für das schwachwechselwirkende KMH-Modell finden wir mit Rashba-Kopplung kleiner als $\lambda_R \lesssim 2.8\lambda$ einen topologischen Isolator, der von der intrinsischen Spin-Bahn-Kopplung induziert wird. Die Klassifizierung der topologischen Phase findet über die Randzustände statt und liefert uns die Phasengrenze der topologischen Phase bei $\lambda_R = 2\sqrt{3}\lambda$ für $U = 0$. Im wechselwirkungsfreien verschwindet hier sowohl die topologische Invariante als auch die Randzustände und es findet ein Übergang zu einem trivialen Metall statt. Unterhalb dieser Grenze befindet sich die topologische Halbmetallphase, deren Ausdehnung von der Stärke der intrinsischen Spin-Bahn-Kopplung abhängt, und erst oberhalb von $\lambda > 0.1$ messbar erscheint. Für stärkere intrinsische Spin-Bahn Kopplung wird der Bereich immer größer und ist bei $\lambda = 0.2$ bereits $0.58 < \lambda_R < 0.69$. Für starke Wechselwirkung finden wir eine, um die z-Achse rotationssymmetrische, XY-AFM Ordnung, die etwa bei $\lambda_R \sim 2\lambda$ zusammenbricht. Übrig bleibt ein großer Bereich für starke Wechselwirkung zusammen mit starker Rashba-Spin-Bahn-Kopplung, in dem wir mit der VCA eine Bandlücke im Einteilchenspektrum finden, aber keine Ordnung feststellen können. Sehr wahrscheinlich tritt hier eine magnetische Ordnung auf, die nicht kommensurabel ist, mit den in der VCA verwendeten Cluster. Wie bereits in der Einleitung dieses Kapitels erwähnt, ist es möglich, dass auch hier eine spiralmagnetische Ordnung auftritt, da der Spin-Hamiltonian, den man im Grenzfall sehr starker Wechselwirkung $U \to 0$ erhält, Dzyaloshinskii-Moriya Terme enthält. In einem ähnlichen Modell mit multidirektionaler Spin-Bahn-Kopplung, das später noch behandelt wird, findet man für starke Wechselwirkung eine solche spiralmagnetische Ordnung [135–137]. Mit der VCA kann man nicht klären, ob es sich für große Wechselwirkung und starker Rashba-Kopplung tatsächlich um eine NMI Phase handelt oder doch eher um eine spiralmagnetische Phase. Die Existenz dieser NMI Phase in dem Bereich wäre aber sehr spannend, da diese mit der kürzlich vorgeschlagenen fraktionalen Spinflüssigkeitsphase verwandt sein könnte [138].

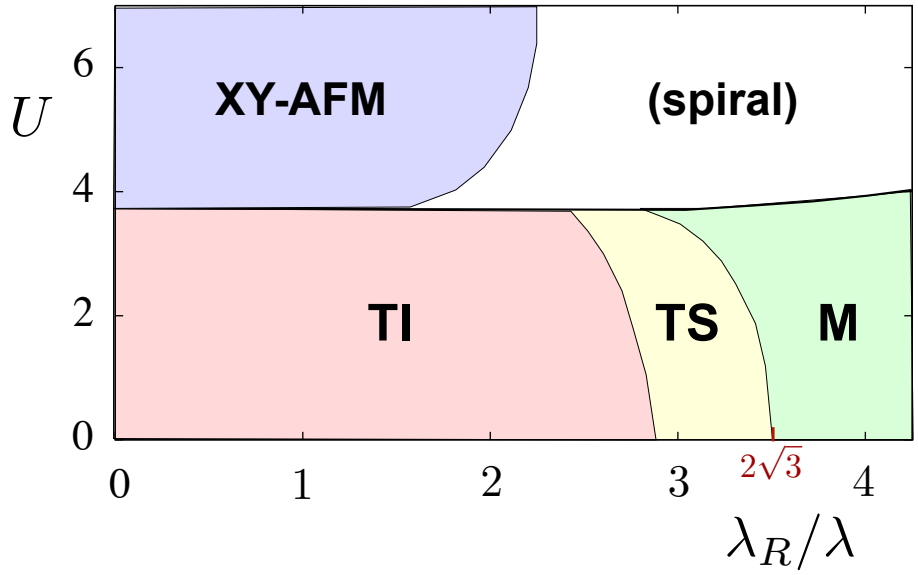


Abbildung 4.29: Schematisches $U - (\lambda_R/\lambda)$ Phasendiagramm des vollständigen Kane-Mele-Hubbard-Modells bei $\lambda = 0.2$. Es erscheinen fünf verschiedene Phasen: ein topologischer Isolator (TI), ein topologischer Halbleiter ohne Bandlücke (TS), ein Metall (M), eine antiferromagnetisch geordnete Phase mit Ordnung in der xy-Ebene (XY-AFM), sowie ein Bereich in dem inkommensurable spiral magnetische Ordnung möglich ist. Für noch größere Werte von λ wird die TS Phase einen breiteren Bereich einnehmen und wird kleiner für kleinere λ und verschwindet für $\lambda < 0.1$.

4.4 Multi-direktionale Spin-Bahn-Kopplung: Na_2IrO_3

Nachdem wir mit dem Kane-Mele-Hubbard-Modell eine intrinsische Spin-Bahn-Kopplung untersucht haben, die eine Rotationssymmetrie um die z-Achse erhält, untersuchen wir im Folgenden eine Verallgemeinerung auf einen multidirektionalen Spin-Bahn-Kopplungsterm. Dieses Modell wurde im Zusammenhang mit Monolagen von Na_2IrO_3 von Shitade *et al.* [25] vorgeschlagen. Im Gegensatz zum Kane-Mele-Modell werden in diesem Modell keine axialen Rotationssymmetrien erhalten. Wir werden dieses Modell in Anlehnung an die Literatur, und das Englische *sodium iridate*, im Folgenden als SI-Modell bezeichnen und entsprechend den Spin-Bahn Kopplungsterm auch λ_{SI}. Das Hubbard-Modell mit dem multidirektionalen Spin-Bahn-Kopplungsterm wird dann beschrieben von folgendem Hamiltonian:

$$\mathscr{H}_{SIH} = -t \sum_{\langle ij\rangle,\sigma} c^\dagger_{i\sigma} c_{j\sigma} + i\lambda_{SI} \sum_{\langle\langle ij\rangle\rangle} \sum_{\alpha\beta} c^\dagger_{i\sigma} \nu_{ij} \sigma^w_{\sigma\sigma'} c_{j\sigma'} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma} \,. \tag{4.12}$$

Hierbei werden die Spins, je nachdem in welche Richtung ein Hüpfen stattfindet, mit einer der drei Paulimatrizen gekoppelt, wie es in Abbildung 4.30 schematisch dargestellt ist. Außerdem gehen noch die Beiträge des reellen nächste Nachbar Hüpfens t, der lokalen Coulombabstoßung in Form des Hubbard-U und des chemischen Potentials μ, zum Einstellen der Füllung des Systems, in den Hamiltonian ein. Im Allgemeinen bricht eine Kopplung

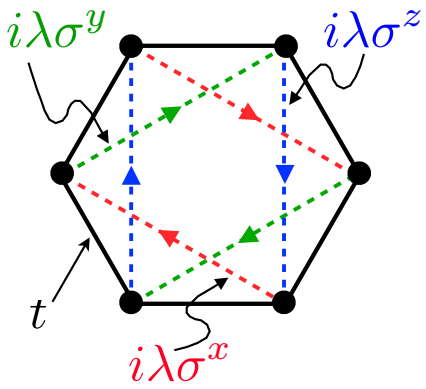


Abbildung 4.30: Schematische Darstellung der multidirektionalen Spin-Bahn-Kopplung des SIH-Modells. Die farbigen Verbindungen zwischen übernächsten Nachbarn geben an, über welche der drei Paulimatrizen die Spins gekoppelt werden. Die schwarzen nächste Nachbar Verbindungen sind reele Hüpfen.

des Spins an den Impuls immer zumindest die SU(2) Symmetrie, erhält aber im Falle des Kane-Mele-Modells noch die U(1) Rotationssymmetrie um die z-Achse. Im SIH-Modell ist jetzt aber auch diese Symmetrie gebrochen. Im

Gegensatz zum Kane-Mele Modell mit Rashba-Spin-Bahn-Kopplung ist dieses System jedoch inversionssymmetrisch, das heißt, wir sind in der Lage die topologische Invariante zu berechnen, unter Benutzung der vereinfachten Formel, wie sie in Abschnitt 4.2.2.1 vorgestellt wurde.
Neben der Inversionssymmetrie ist auch die Zeitumkehrsymmetrie des Systems gegeben. Dadurch kann die Bandstruktur der wechselwirkungsfreien Systeme des Kane-Mele-Modells, sogar mit Rashba Term, durch kontinuierliche Transformationen in das des SIH-Modells übergeführt werden, ohne dass sich die Bandlücke schließt [139]. Die topologische Bandisolatorphasen sind adiabatisch verbunden, das heißt beide Phasen besitzen die selbe topologische Invariante $\mathbb{Z}_2$. Dies gilt dann auch für schwache Wechselwirkungen in den Systemen und man findet auch im SIH-Modell für schwache Wechselwirkung einen topologischen Isolator.
Der starkwechselwirkende Grenzfall des Systems unterscheidet sich stark vom KMH-Modell. Während die antiferromagnetische Ordnung im Kane-Mele-Modell die Frustration, verursacht durch die Spin-Bahn-Kopplung, vermeiden kann, ist dies im vollständig symmetriegebrochenen Fall des SIH-Modells nicht mehr der Fall. Das KMH-Modell liefert eine kommensurable magnetische Ordnung. Dagegen führt die gebrochene axiale Spinsymmetrie des SIH zu einem Übergang von kommensurabler zu inkommensurabler Ordnung und demnach zu einem komplexerem Phasendiagramm. Für kleinere Spin-Bahn-Kopplung findet man im starkwechselwirkenden SIH-Modell eine rotationssymmetrische Néel-AFM Phase, die dann übergeht in eine inkommensurable Phase [135].
An anderer Stelle wurde behauptet, dass die Kombination starker Spin-Bahn-Kopplung mit starker Wechselwirkung eine topologisch geordnete Phase auf dem Honigwabengitter hervorbringen könnte, wenn der Spin nicht erhalten bleibt. Eine *mean-field* Untersuchung dieses Modells liefert ein sehr interessantes Phasendiagramm, in dem neben der normalen QSH Phase für schwache Wechselwirkung, die adiabatisch verbunden ist mit der des KMH-Modells, und einem Antiferromagneten für starke Wechselwirkungsstärken, ist eine QSH* Phase zu finden [138]. Diese soll Randzustände aber eine triviale $\mathbb{Z}_2$ topologische Invariante besitzen. Diese neue Phase ist nicht adiabatisch mit der QSH Phase verbunden und deshalb durch Schließen der Bandlücke von dieser getrennt.

4.4.1 Wechselwirkungsfreie Bandstruktur

Bereits kleine Spin-Bahn-Kopplung führt zu einer Bandlücke, die zu einem topologischem Isolator gehört. Dieser topologische Isolator ist adiabatisch mit der QSH Phase des Kane-Mele-Modells verbunden, hat also den selben topologischen Index $\mathbb{Z}_2$. Auch das SIH-Modell hat natürlich im Grenzfall verschwindender Spin-Bahn-Kopplung die semimetallische Phase und geht genau in das Modell von Graphen über. Die elektronische Bandstruktur setzt sich zusammen aus einem Term des Graphens und einem Term, der aus der Spin-Bahn-Kopplung entsteht, man erhält:

$$\varepsilon\left(\mathbf{k}\right) = \pm\sqrt{t^2\left(3 + 2\cos(\sqrt{3}k_x) + 4\cos(\frac{\sqrt{3}}{2}k_x)\cos(\frac{3}{2}k_y)\right) + 2\lambda_{SI}^2 v(k_x, k_y)} \tag{4.13}$$

$$\text{mit } v(k_x, k_y) = 3 - \cos(2k_y) - 2\cos(k_y)\cos(\sqrt{3}k_x) \tag{4.14}$$

Bis zu einer Stärke der Spin-Bahn-Kopplung von $\lambda_{SI} < \frac{1}{3}$ geht eine Band-

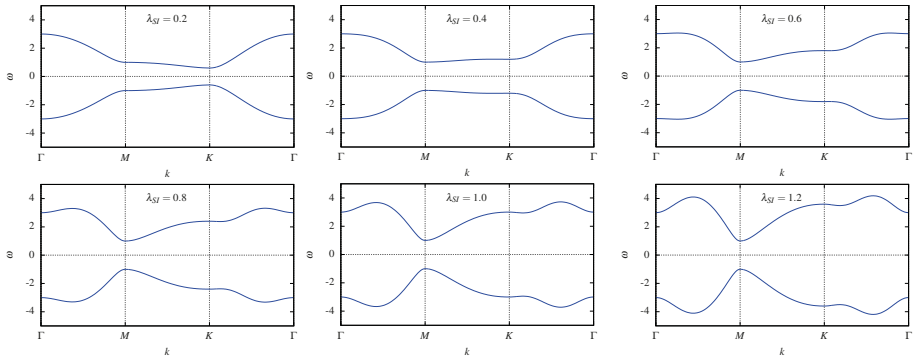


Abbildung 4.31: Bandstruktur des wechselwirkungsfreien SI-Hubbard-Modells für verschiedene Stärken der Spin-Bahn-Kopplung. Die Spin-Bahn-Kopplung λ_{SI} führt zu einem öffnen der Bandlücke bei K. Die Bandlücke bei M bleibt davon unberührt, was zu einer maximalen Bandlücke von $\Delta_{sp} = 2$ führt.

lücke direkt proportional zur Kopplungsstärke λ_{SI} auf. Die Bandlücke bleibt dann konstant bei $\Delta = 2$ für $\lambda_{SI} > \frac{1}{3}$, siehe Abbildung 4.32. Die direkte Bandlücke am K-Punkt geht weiter mit der Kopplungsstärke auf, aber der Abstand der Bänder am M-Punkt bleibt unverändert, was in den Dispersionen in Abbildung 4.31 zu sehen ist.

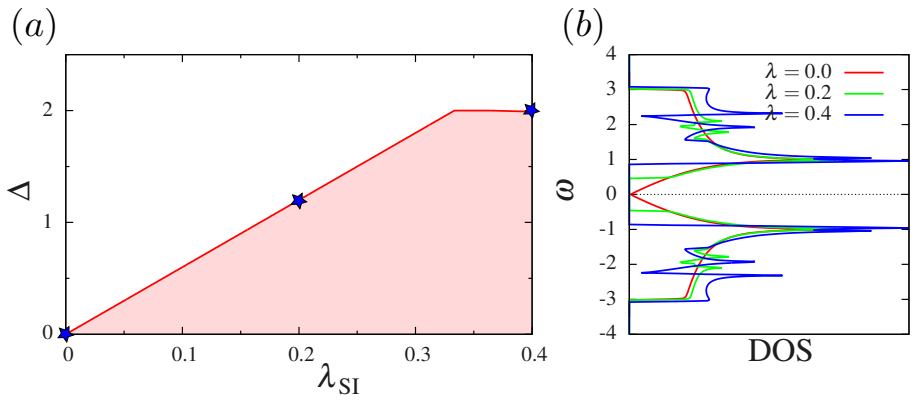


Abbildung 4.32: (a) Einteilchen Bandlücke Δ als Funktion der SI Spin-Bahn-Kopplung, zunächst mit linearem Anstieg bis zur Sättigung bei $\lambda_{SI} = \frac{1}{3}$. (b) Lokale Zustandsdichte für $\lambda_{SI} = 0.0, 0.2, 0.4$ für die Dispersionen, die in Abbildung 4.31 gezeigt sind und links als Sterne markiert.

4.4.2 Schwache Wechselwirkung: Quanten Spin-Hall Phase

Das schwach wechselwirkende SI-Hubbard-Modell liefert, genau wie das Kane-Mele-Hubbard-Modell, einen topologischen Band-Isolator für endliche intrinsische Spin-Bahn-Kopplung. Diese topologische Phase ist direkt mit der topologischen Phase des wechselwirkungsfreien Systems verbunden. Der TI des SIH-Modells ist wie im KMH-Modell ein zeitumkehrinvarianter $\mathbb{Z}_2$ topologischer Isolator. Dies hat zur Folge, dass beide die gleiche topologische Invariante $\mathbb{Z}_2$ besitzen. Da durch die multidirektionale Spin-Bahn-Kopplung des SIH-Modells, im Gegensatz zur Rashba Kopplung, die Inversionssymmetrie nicht gebrochen wurde, ist es möglich die topologische $\mathbb{Z}_2$ Invariante hier auch in Anwesenheit der Wechselwirkung sehr einfach nach Gleichung (4.9) zu berechnen. In der Bandlücke des Bulks ähnelt das SIH-Modell dem KMH-Modell noch, sieht man sich aber die Randzustände an, so erkennt man leicht Unterschiede zum KMH-Modell. Während im KMH-Modell an einem Rand der Probe zwei Ströme existieren, die beide perfekt spin-polarisiert sind, findet man im SIH-Modell, dass diese Polarisation aufgehoben wurde. Dies zeigt sich in Abbildung 4.33, in der die Spektralfunktion am unteren Rand der Probe gezeigt ist, links für Spin-↑ und rechts für Spin-↓ Elektronen. Es existieren also gegenläufige Ströme beider Spinsorten an einer Kante der Probe. Auch diese Randströme im SIH-Modell sind durch die Zeitumkehrsymmetrie topologisch geschützt, das heißt, ein elastisches Rückstreuen in den gegenlaufenden Kanal ist nicht möglich und auch hier findet man verlustfreien Ladungstransport am Rand der Probe, siehe Abschnitt 1.4.

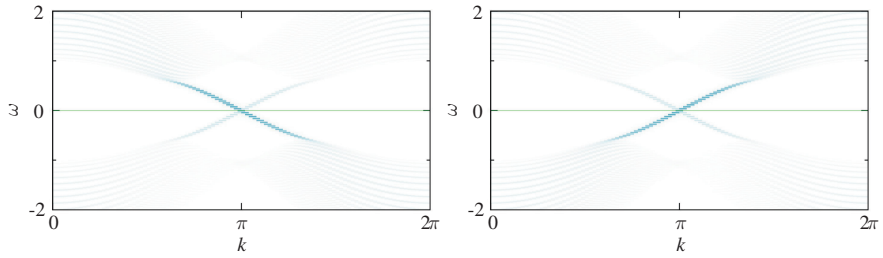


Abbildung 4.33: Spektralfunktion der Randzustände bei $\lambda_{SI} = 0.2$ und $U = 0$, wobei hier der Spin aufgelöst wurde und nur die Spektralfunktion am unteren Rand der Probe gemessen wurde. Links: Spektralfunktion für Spin-↑ Elektronen. Rechts: die Spektralfunktion für Spin-↓ Elektronen

4.4.3 Starke Wechselwirkung: antiferromagnetische Ordnung

Auch in der magnetischen Ordnung unterscheidet sich das SI-Hubbard-Modell vom KM-Hubbard-Modell. Im KM Modell führt die Spin-Bahn-Kopplung zu einer Frustration der z-Komponente, der ausgewichen werden kann, wodurch sich eine um die z-Achse rotationssymmetrische XY-AFM Ordnung ausbildet. Im Gegensatz zum KM Modell, sind im SIH-Modell die Kopplungsterme nicht nur an eine Pauli-Matrix gekoppelt, sondern an alle drei. Dies führt zu einer gleichmäßigen Frustration in allen Spinrichtungen, der nicht wie im KM Modell ausgewichen werden kann. Ohne Spin-Bahn-Kopplung findet man natürlich den rotationssymmetrischen Néel-AFM von Graphen, der im SIH-Modell auch für kleine Spin-Bahn Kopplungen stabil bleibt. Im Grenzfall unendlicher Wechselwirkung lässt sich das SIH-Modell als Spin-Hamiltonian schreiben

$$H_{SI} = J_1 \sum_{\langle ij \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j - J_{\lambda_{SI}} \sum_{\langle\langle ij \rangle\rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + 2J_{\lambda_{SI}} \sum_{\omega - bonds} S_i^\omega S_j^\omega \tag{4.15}$$

mit $\mathbf{S}_i$ dem vollen Spinoperator am Gitterplatz i, die $\omega - bonds$ bezeichnen die zweit-nächste Nachbar Verbindungen, die in Abbildung 4.30 durch farbige Pfeile dargestellt sind, und S_i^ω ist die ω-Komponente ($\omega \in \{x, y, z\}$) des Spinoperators. Reuther *et al.* [135] finden für dieses Modell die Néel-Ordnung bis $J_{\lambda_{SI}}/J_1 \leq 0.53$, was einer Kopplungsstärke von $\lambda_{SI}/t \leq 0.73$ entspricht. Für größere Kopplungsstärken finden sie einen Übergang in eine inkommensurable spiralmagnetische Phase, bei der sich der magnetische Ordnungsvektor von $\mathbf{Q} = \mathbf{K} = (K_x, K_y)$ kontinuierlich dem Grenzwert $Q = (K_x, 2/3K_y)$ annähert für $J_{\lambda_{SI}}/J_1 \to \infty$. Mit der VCA ist es nicht möglich, magnetische Ordnung zu untersuchen, die inkommensurabel mit dem Cluster ist, das heißt wir sind nur in der Lage die Néel-AFM Phase für schwache Spin-Bahn-Kopplung zu messen. Vermutlich wird diese, im Rahmen der untersuchten Testselbstenergien der VCA, aber auch noch stabil sein, in einem Bereich, in dem eigentlich bereits eine inkommensurable

Ordnung vorliegt, also energetisch günstiger wäre. In Abbildung 4.34 ist die Abhängigkeit des großkanonischen Potentials von den antiferromagnetischen Weissfeldern in z- und $x-$Richtung bei relativ schwacher Wechselwirkung $U = 6$ gezeigt. Man sieht, dass nur für $\lambda_{SI} = 0$ ein rotationssymmetrischer Néel-AFM vorliegt, der aber für endliche Spin-Bahn-Kopplung in eine magnetische Ordnung übergeht die eine diskrete Richtung bevorzugt. Diese Berechnung war aber lediglich ein zweidimensionaler Schnitt durch den dreidimensionalen Raum der Spinoperatoren. Sieht man sich die Abhängigkeit der stationären Lösungen in allen drei Dimensionen an, so findet man eine Entartung auf einem Kreis der schräg im Raum liegt, was in Abbildung 4.37 für $U = 10$ gezeigt ist. Zunächst findet man nur einen Kreis (rot), aber je nach dem wie man die Untergitter der Weissfelder h^x, h^y und h^z definiert, wird dann je eine Dimension ($h^x \to -h^x$ oder $h^y \to -h^y$ oder $h^z \to -h^z$) gespiegelt. Dadurch erhält man vier äquivalente Lösungskreise, die auf einer Kugel um den Nullpunkt liegen. Die Entartung der Lösung auf einem Kreis deutet eigentlich auf eine *easy-plane* AFM-Ordnung hin, ähnlich der Ordnung, die man im KMH-Modell findet und als XY-AFM bezeichnet wird. Im SIH-Modell ist die Lösung nicht rotationssymmetrisch bezüglich einer Spin-Achse, sondern die Achse liegt schräg im Raum, deshalb bezeichnen wir diese Ordnung xyz-AFM. Die entarteten Lösungen des XY-AFM im KMH-Modell werden, durch die eben beschriebene Vertauschung der Untergitter, wieder auf sich selbst abgebildet, man erhält so keine zusätzliche Lösung. Die vier Lösungskreise, der xyz-AFM Ordnung, deuten also darauf hin, dass man nicht einfach eine *easy-plane* AFM-Ordnung erhält. Möglicherweise ist die gefundene Ordnung die kommensurable Signatur einer eigentlich inkommensurablen spiralmagnetischen Ordnung. Wenn man, wie in Abbildung 4.35, zu stärkeren Wechselwirkungen $U = 30$ geht, findet man eine Stabilisierung der rotationssymmetrischen AFM-Ordnung bis etwa $\lambda_{SI} \simeq 0.4$ und erst für größere Spin-Bahn-Kopplung eine Aufhebung der Entartung. Bei $U = 100$ ist die Rotationssymmetrie bereits bis nahezu $\lambda_{SI} \simeq 0.6$ gegeben. Dies könnte dann für $U \to \infty$ in den Grenzfall des Spin-Modells von Reuther *et al.* $\lambda_{SI}/t \leq 0.73$ übergehen. Man findet also, dass die Ladungsfluktuationen, die zunehmen je schwächer die Wechselwirkung ist, der rotationssymmetrischen AFM-Ordnung entgegenwirken und hier in der VCA eine pseudo *easy-plane* AFM-Ordnung bevorzugen. Diese Phase entspricht vermutlich der inkommensurablen spiralmagnetischen Ordnung die man im Spin-Modell gefunden hat.

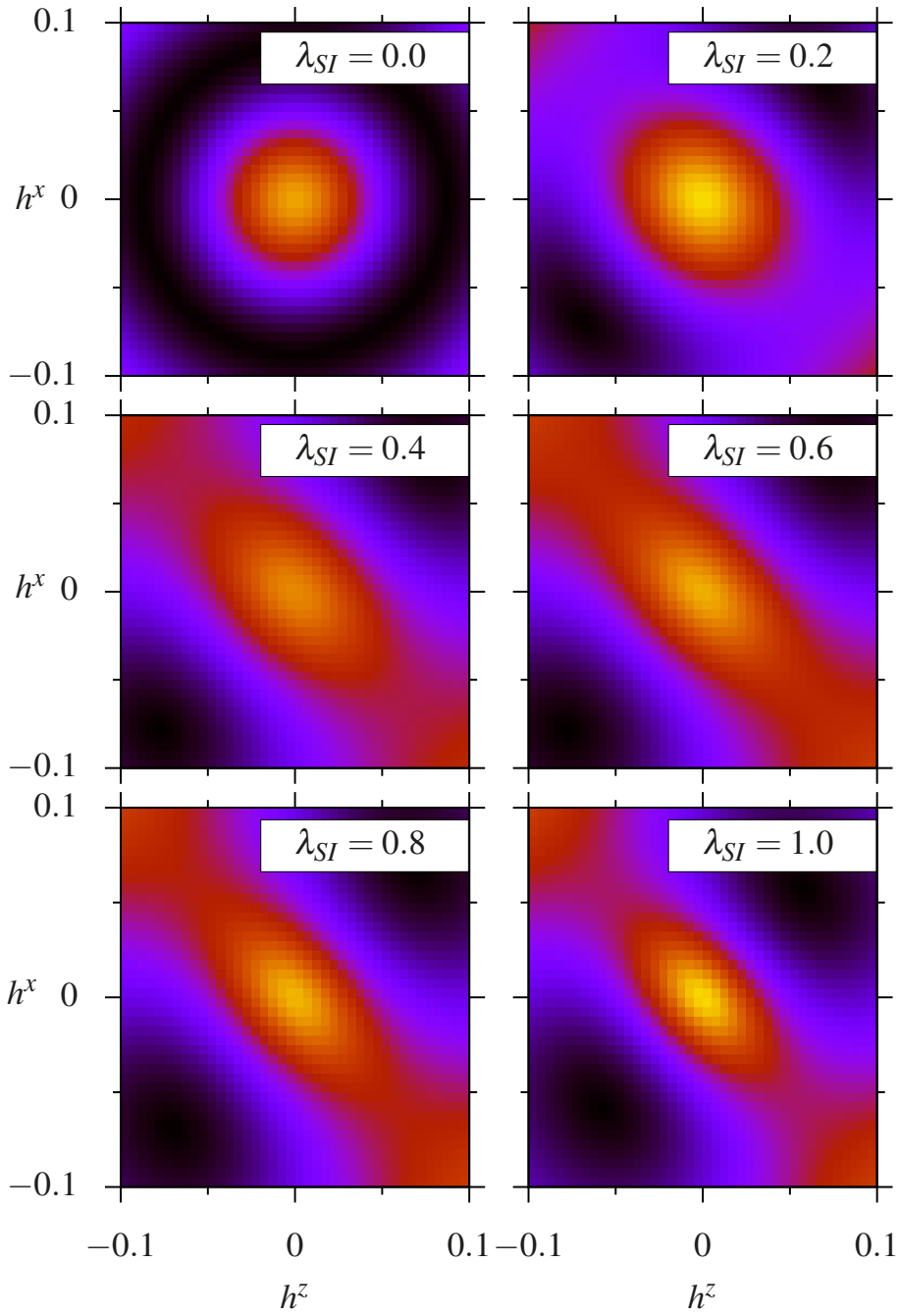


Abbildung 4.34: Großkanonisches Potential $\Omega(h^z, h^x)$ als Funktion der antiferromagnetischen Weissfelder in z- und $x-$Richtung für verschiedene Werte der Spin-Bahn-Kopplung λ_{SI}, bei einer Wechselwirkungsstärke von $U = 6$. Das dritte Weissfeld $h^y = 0$ wurde für diese Bilder deaktiviert. Je dunkler umso kleiner das Potential. Das Referenzsystem besteht aus entkoppelten sechs-Platz Clustern.

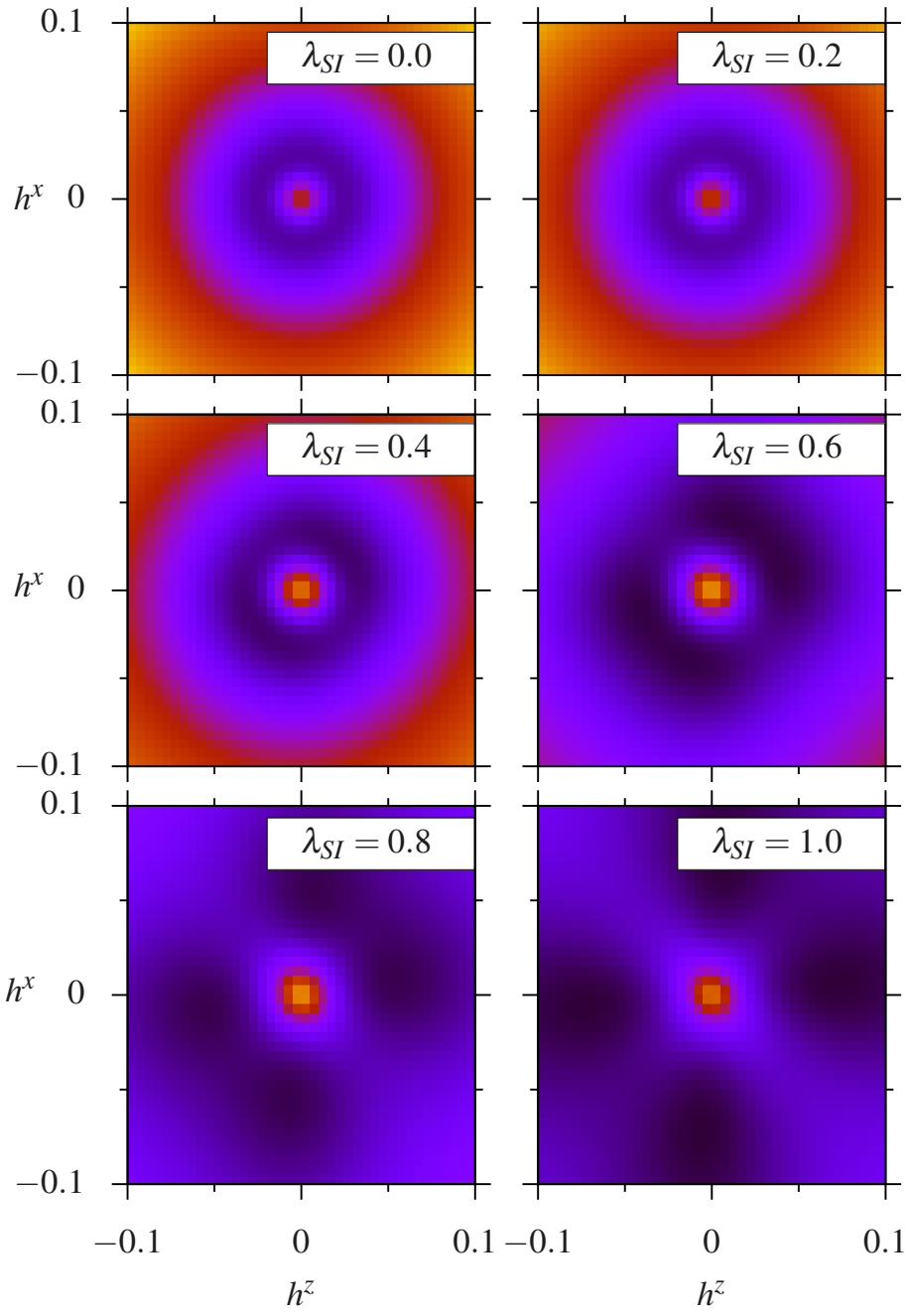


Abbildung 4.35: Großkanonischen Potentials $\Omega(h^z, h^x)$ als Funktion der antiferromagnetischen Weissfelder in z- und $x-$Richtung für verschiedene Werte der Spin-Bahn-Kopplung λ_{SI}, bei einer Wechselwirkungsstärke von $U = 30$. Das dritte Weissfeld $h^y = 0$ wurde für diese Bilder deaktiviert. Je dunkler umso kleiner das Potential. Das Referenzsystem besteht aus entkoppelten sechs-Platz Clustern.

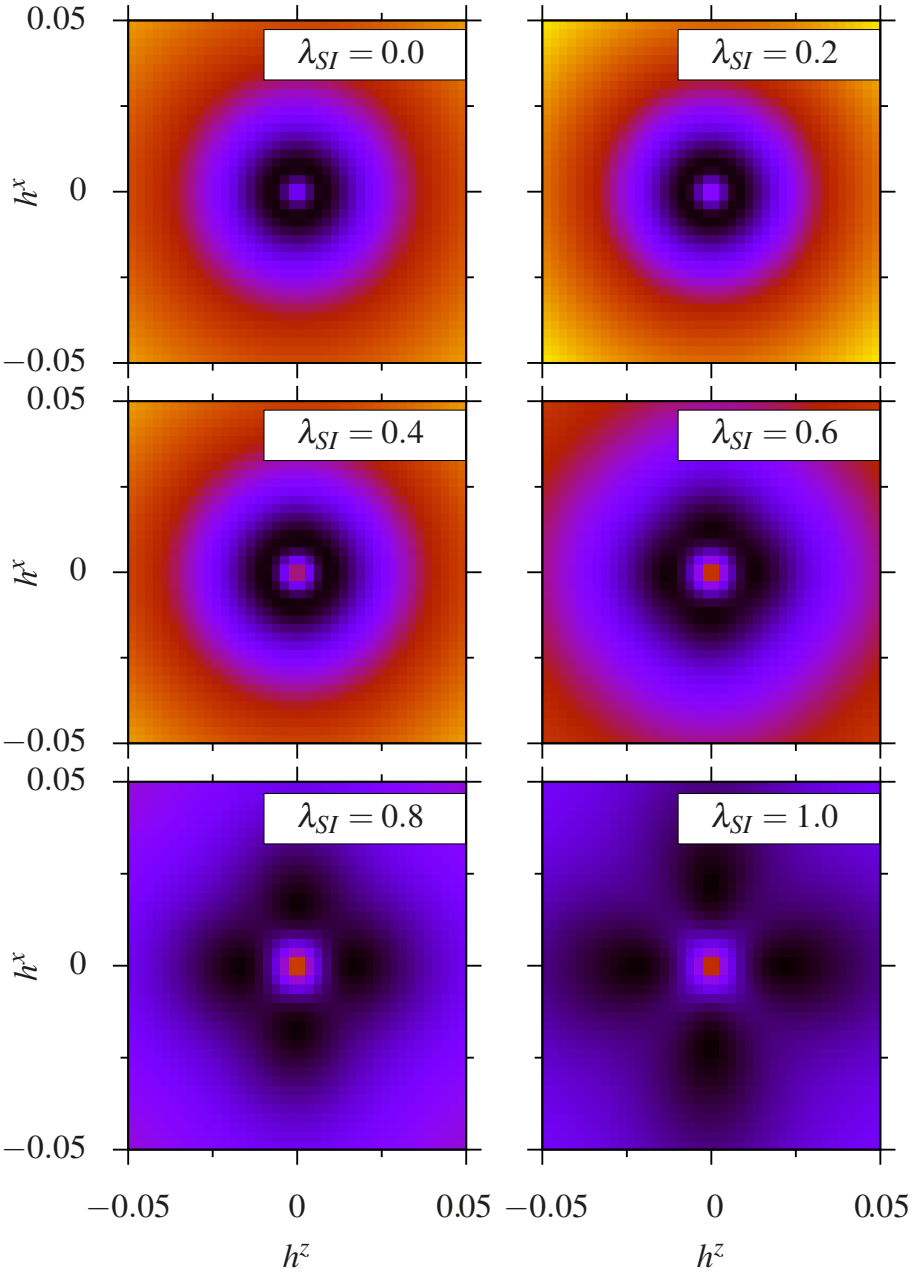


Abbildung 4.36: Großkanonischen Potentials $\Omega(h^z, h^x)$ als Funktion der antiferromagnetischen Weissfelder in z- und $x-$Richtung für verschiedene Werte der Spin-Bahn-Kopplung λ_{SI}, bei einer Wechselwirkungsstärke von $U = 100$. Das dritte Weissfeld $h^y = 0$ wurde für diese Bilder deaktiviert. Je dunkler umso kleiner das Potential. Das Referenzsystem besteht aus entkoppelten sechs-Platz Clustern.

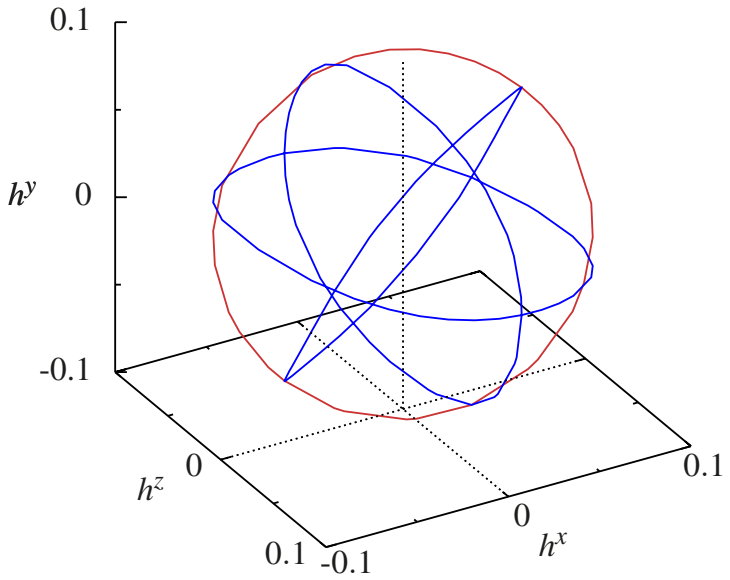


Abbildung 4.37: Stationäre Lösungen im Raum der drei Weissfelder h^x, h^y und h^z für $U = 10$ und $\lambda_{SI} = 0.4$. Man erhält je nach Definition der Untergitter im Weissfeld vier verschiedene Lösungen, die jeweils auf einem Kreis liegen.

4.4.4 Phasendiagramm

Die Ergebnisse für schwache und starke Wechselwirkung werden nun für das sechs-Platz und das acht-Platz Cluster jeweils zu einem Phasendiagramm zusammengefasst. Das sechs-Platz Cluster liefert auch im SIH-Modell eine endliche Ausdehnung der NMI Phase die bereits ohne Spin-Bahn-Kopplung besteht. Diese NMI Phase ist auch hier als Artefakt anzusehen, wie es bereits für Graphen und das Kane-Mele-Modell diskutiert wurde. Beide Cluster liefern übereinstimmend einen Néel-AFM für starke Wechselwirkungsstärken und eine Quanten Spin Hall Phase für schwache Wechselwirkung. Der Phasenübergang zwischen der QSH und der Néel-AFM Phase wird dadurch bestimmt, dass ein endliches Weissfeld zu einer Erniedrigung der Energie führt, wodurch es zu einem Phasenübergang ohne das Schließen der Bandlücke kommt, obwohl man einen Übergang zwischen zwei Phasen mit verschiedenem topologischen Index untersucht. Die Phasengrenze verläuft auch in beiden Referenzsystemen analog und nähert sich für starke Spin-Bahn-Kopplung sogar noch weiter an. Die rotationssymmetrische Néel-AFM Phase ist nur für schwache Spin-Bahn-Kopplungen stabil und wir erhalten eine xyz-AFM Ordnung, die einer *easy-plane* AFM-Phase ähnelt, denn man findet entartete Lösungen auf vier anstatt einem Kreis um den Ursprung. Ein exakter Phasenübergang ist mit der VCA nur schwer zu finden, weshalb wir die AFM-Phase mit einem Gradienten darstellen, wobei wir im dunkelblauen Bereich schwacher Spin-Bahn Kopplung den Néel-AFM finden und im hellblauen Bereich starker Spin-Bahn Kopplung den xyz-AFM.
Wir sind nicht in der Lage den Übergang von der AFM Phase zu einer inkommensurablen Phase zu beobachten und finden diese auch nicht, jedoch besteht die Möglichkeit, dass die xyz-AFM Phase eine kommensurable Signatur der inkommensurablen Phase ist. Einen Hinweis auf die von Rüegg und Fiete [138] vorgeschlagene QSH* Phase konnten wir nicht finden, können eine solche Phase aber mit der VCA auch nicht ausschließen, da diese sich vermutlich in einem Bereich des Phasendiagrammes befindet, der von Inkommensurabilitäten dominiert ist. Des Weiteren wären vermutlich weitaus größere Cluster nötig um diese Phase zu stabilisieren.
Wir finden im λ_{SI}-U Phasendiagramm bis zu einer Kopplungsstärke von $\lambda_{SI} < 1.0$ drei Phasen: im schwach Wechselwirkenden die Halbmetallphase ohne Spin-Bahn-Kopplung und für endliche Kopplungsstärken eine QSH-Phase. Für starke Wechselwirkung finden wir einen Néel-AFM Isolator.

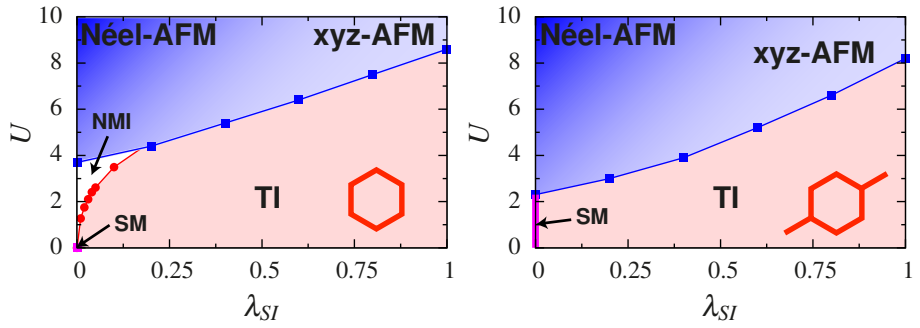


Abbildung 4.38: Phasendiagramm des SI Hubbard-Modells mit dem (a) sechs-Platz Cluster und (b) acht-Platz Cluster als Referenzsystemen. Wir finden eine topologische Isolatorphase (TI), einen rotationssymmetrischen antiferromagnetischen Isolator (Néel-AFM) und einen pseudo-*easy-plane* AFM Isolator (*xyz*-AFM), ein Halbmetall (SM) sowie eine nichtmagnetische Isolatorphase (NMI).

Kapitel 5

Topologie und Frustration im Dreiecksgitter

In diesem letzten Kapitel werde ich ein Hubbard-artiges Modell auf dem Dreiecksgitter vorstellen, das sich aus dem SI-Hubbard-Modell aus Kapitel 4.4 ableitet, wenn man den Grenzfall unendlich starker Spin-Bahn-Kopplung betrachtet, bzw. die normale Hüpfamplitude $t \to 0$ gehen lässt. Dann besitzt das System ein Hüpfmuster, das je nach Richtung des Hüpfens eine andere Spinabhängigkeit besitzt. Wir werden sehen, dass auch dieses Modell für mittlere Wechselwirkungsstärken, ähnlich dem isotropen Dreiecksgitter, vermutlich eine Spinflüssigkeitsphase besitzt. Das Modell wird durch folgenden Hamiltonian beschrieben

$$\mathscr{H}_{KH} = it \sum_{\langle ij \rangle} \sum_{\alpha\beta} c^{\dagger}_{i\sigma} \nu_{ij} \sigma^{w}_{\sigma\sigma'} c_{j\sigma'} + U \sum_{i} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i\sigma} \tag{5.1}$$

Hier gibt w für die verschiedenen Hüpfrichtungen an, mit welcher Paulimatrix $\sigma^w (w \in \{x, y, z\})$ die Hüpfen gekoppelt werden und $\nu_{ij} = \pm 1$ je nach Richtung des Hüpfens, wie in Abbildung 5.1 dargestellt. t ist die Hüpfamplitude zwischen nächsten Nachbarn $\langle ij \rangle$, U die lokale Hubbard-Wechselwirkung und μ das chemische Potential. Das Modell lässt sich im Grenzfall unendlicher Wechselwirkungsstärke wieder als Spin-Hamiltonian schreiben, der sich aus Gleichung (4.15) ableitet

$$H = J \sum_{\langle\langle ij \rangle\rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + 2J \sum_{\omega - bonds} S^{\omega}_i S^{\omega}_j \tag{5.2}$$

und ist ein Spezialfall des Kitaev-Heisenberg-Modells [140, 141], das durch $H_K = \sum_{\langle ij \rangle} \left[\eta \left(1 - |\alpha|\right) \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j - 2\alpha S^{\omega}_i S^{\omega}_j \right]$ beschrieben wird. Deshalb nennen wir das Modell, das wir in Gleichung (5.1) beschrieben haben, im weiteren Kitaev-Hubbard (KH) Modell. Da das KH-Modell mit seinem spinabhängigen imaginären Hüpfen nicht intuitiv verständlich ist, wenden wir

eine Klein-Transformation, wie sie bereits für die Iridate oder das Kitaev-Heisenberg Modell erfolgreich angewandt wurden [135,141–143], auf die Bandstruktur des *tight-binding*-Modells an, um die Hüpfamplituden in reelle spinunabhängige Hüpfen zu transformieren. Durch diese Transformation erhalten wir das bekannte Heisenberg Modell des isotropen Dreiecksgitters, woraus wir direkt die magnetischen Eigenschaften ablesen können. Die duale Bandstruktur, die wir aus der Transformation des KH-Modelles erhalten, erzeugt durch jedes zweite Dreieck einen Fluss π. Wir untersuchen nun diese duale Bandstruktur genauer und nennen das Modell im Folgenden Flussgitter. Wir finden für schwache Wechselwirkung eine halbmetallische Phase, für mittlere eine nichtmagnetische Isolatorphase und für starke Wechselwirkung die 120°-Néel-Ordnung. Diese Ergebnisse müssen dann wieder zurücktransformiert werden, wobei sich die Eigenschaften des Halbmetalls und des nichtmagnetischen Isolators nicht verändern. Nur die 120°-Néel Isolatorphase transformiert sich in eine spiralmagnetische Phase mit einer magnetischen Einheitszelle von zwölf Plätzen [135, 143]. Die Paarung dieser beiden Umstände, die Halbmetallizität für schwache und frustrierter Magnetismus für starke Wechselwirkung, ergeben zusammen wichtige Zutaten für eine mögliche Spinflüssigkeitsphase, die sich zwischen diesen beiden Phasen finden könnte.

5.1 Kitaev-Hubbard-Modell

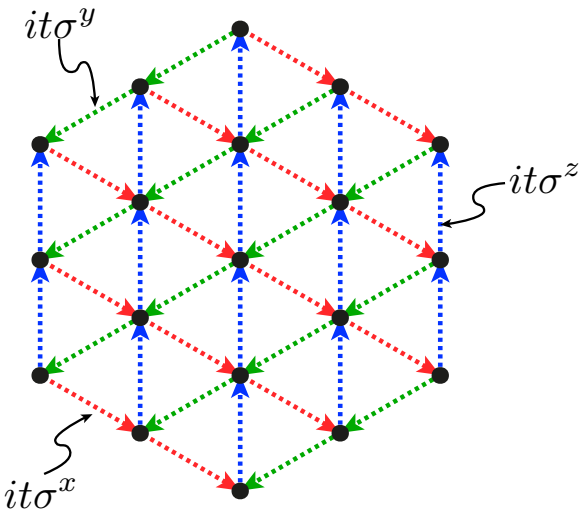


Abbildung 5.1: Im Grenzfall unendlicher Spin-Bahn-Kopplung $\lambda_{SI} \to \infty$ des SIH-Modells entkoppeln die Untergitter und man erhält zwei entkoppelte Dreiecksgitter. Die Verbindungen stellen jeweils die Kopplung zwischen den Gitterplätzen dar, und sind je nach Richtung $w \in \{x, y, z\}$ über verschiedene Paulimatrizen $it\sigma^w$ gekoppelt.

Das Kitaev-Hubbard-Modell, wie es durch dem Hamiltonian in Gleichung (5.1)

und Abbildung 5.1 beschrieben wird, hat mit seinem imaginären Hüpfen eine sehr ungewöhnliche Form. Da dieses Modell aber, motiviert als Grenzfall des SIH-Modells mit unendlicher Spin-Bahn-Kopplung, im Grenzfall $U \to \infty$ in das Kitaev-Heisenberg Modell übergeht, ist es gerechtfertigt dieses Modell zu untersuchen, dennoch wäre eine intuitivere und besser verständliche Struktur wünschenswert. Deshalb wenden wir das Konzept der Klein-Dualität hier

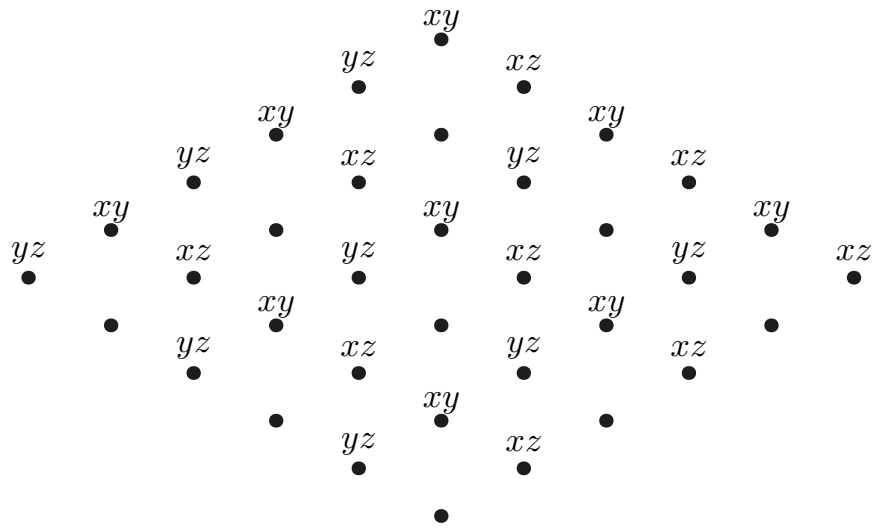


Abbildung 5.2: Für die Klein-Transformation wir das Dreiecksgitter in vier Untergitter eingeteilt: •, yz, xz und xy. Auf den Untergittern werden die Spins jeweils in der Ebene gedreht, die sie bezeichnen. Das Untergitter yz wird also um die x-Achse rotiert, xz um die y-Achse und xy um die z-Achse. Das Untergitter • bleibt unverändert.

auch für das *tight-binding* Modell an. Eine Klein-Transformation wurde bereits erfolgreich für Spin-Hamiltonians angewandt [135,141–143]. Das System wird in vier Untergitter eingeteilt, die wir mit •, yz, xz und xy bezeichnen. Genau wie für die Heisenberg-Spins bleiben die fermionischen Erzeuger und Vernichtungsoperatoren auf dem Untergitter mit •unverändert. Die Bezeichnung der anderen Untergitter geben an, in welcher Ebene die Spins jeweils um $\pi/2$ rotiert werden, sodass ein vereinfachter Hamiltonian entsteht. Das Untergitter yz wird um die x-Achse, xz wird um die y-Achse und xy wird um die z-Achse gedreht. Diese Spinrotationen werden sehr einfach durch die Paulimatrizen erzeugt. Die Transformationsmatrix $\mathscr{U}^\alpha$ für eine Drehung um die α-Achse ist gegeben durch

$$\mathscr{U}^\alpha = \exp\left(i\frac{\pi}{2}\sigma^\alpha\right) = i\sigma^\alpha \tag{5.3}$$

und $\mathscr{U}^{\alpha\dagger} = -i\sigma^\alpha$. Damit lassen sich die Erzeuger und Vernichter des Problems transformieren, und wir erhalten ein spinunabhängiges Problem mit rein reellen Hüpfen, das in Abbildung 5.3(a) dargestellt ist. Dieses neue System hat jetzt nur noch reelle Hüpfterme t und $-t$ mit der selben absoluten

Amplitude, jedoch mit wechselnden Vorzeichen. Dieses Hüpfmuster ist in Abbildung 5.3(a) gezeigt, besitzt eine Einheitszelle von vier Gitterplätzen. Die Hüpfterme lassen sich mit Hilfe einer Phase umschreiben $-t = t \exp i\pi$, wodurch offensichtlich wird, dass man das Problem besser durch ein Muster aus magnetischen Flüssen durch das Gitter beschreibt. Man sieht in Abbildung 5.3(b), dass beim Umlauf eines geschlossenen Dreiecks, je nach dem ob eine gerade oder ungerade Anzahl an $-t$ Hüpfen vorliegt, man immer abwechselnd eine Phase 0 oder π aufnimmt. Dieses Flussmuster ist physikalisch fundamental und beschreibt das System, deshalb ist es uns möglich eine andere kleinere Einheitszelle zu wählen, die das gleiche Flussmuster erzeugt. Dieses Hüpfmuster mit einer Einheitszelle von nur zwei Gitterplätzen

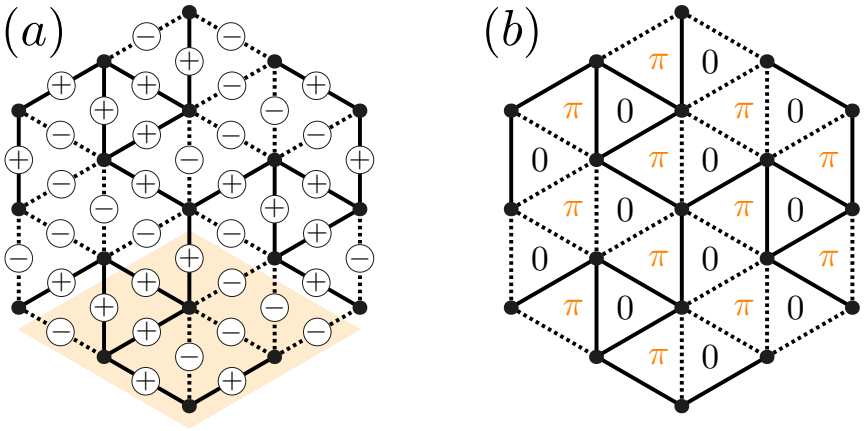


Abbildung 5.3: (a) Dreiecksgitter mit einem Hüpfmuster, das eine vieratomige Einheitszelle besitzt. Alle Hüpfen besitzen dieselbe reelle Amplitude t aber mit unterschiedlichem Vorzeichen. Hüpfen mit negativen Vorzeichen wird gestrichelt dargestellt. (b) Dieses Hüpfmuster führt zu einem Gitter, bei dem durch jedes zweite Dreieck ein Fluss π erzeugt wird.

ist in Abbildung 5.4(a) gezeigt, und das daraus resultierende Flussmuster in Abbildung 5.4(b). Durch die Vergrößerung der Einheitszelle verkleinert sich entsprechend die Brillouinzone im Reziproken Raum. Die Anpassung der Brillouinzone an die jeweilige Einheitszelle des Modells ist in Abbildung 5.6 gezeigt: links die Brillouinzone des KH-Modells auf dem Dreiecksgitter. Die Brillouinzone der Einheitszelle mit vier Gitterplätzen ist lediglich verkleinert, die Brillouinzone des Modells mit einer Einheitszelle von nur zwei Gitterplätzen ist ein verdrehtes Rechteck. Die wechselwirkungsfreie Dispersion des KH-Modells kann man aus Gleichung (4.14) ablesen, indem man $t = 0$ setzt und dafür $\lambda_{SI} = t$:

$$E(\mathbf{k}) = \pm\sqrt{2t^2\left(3 - \cos(2/\sqrt{3}k_y) - 2\cos(1\sqrt{3}k_y)\cos(k_x)\right)} \tag{5.4}$$

$$\tag{5.5}$$

Die Dispersion ist auch in Abbildung 5.5 gezeigt. Man findet Dirac-Punkte

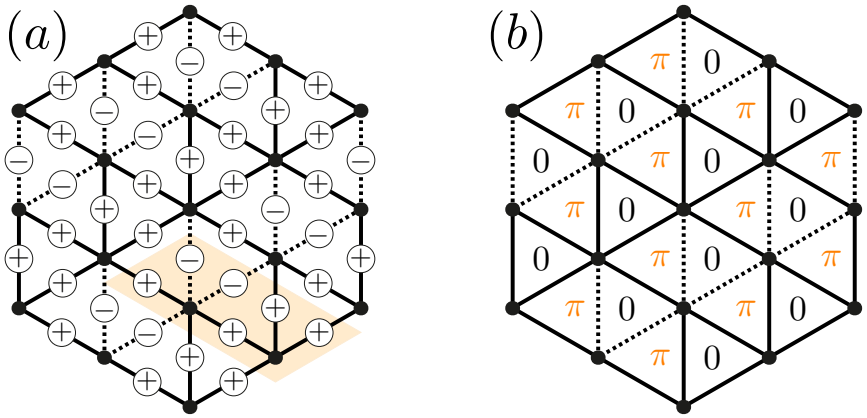


Abbildung 5.4: (a) Man erhält ein Dreiecksgitter mit einem Hüpfmuster mit einer zweiatomigen Einheitszelle. Alle Hüpfen besitzen dieselbe reelle Amplitude t aber mit unterschiedlichem Vorzeichen. Hüpfen mit negativen Vorzeichen werden gestrichelt dargestellt. (b) Dieses Hüpfmuster führt zu einem Gitter, bei dem durch jedes zweite Dreieck ein Fluss π erzeugt wird. Das Flussgitter ist das gleiche wie in Abbildung 5.3(b) für ein Hüpfmuster mit vieratomiger Einheitszelle.

bei Γ und den M-Punkten im KH-Modell. Die duale Bandstruktur mit der zweiatomigen Einheitszelle liefert eine Bandstruktur, die die selbe Dispersion hat, wobei $k'_x \to k_x + \pi/\sqrt{3}$ verschoben ist. Die Positionen der Dirac-Punkte sind für die jeweiligen Modelle in den Brillouinzonen in Abbildung 5.6 rot eingezeichnet.

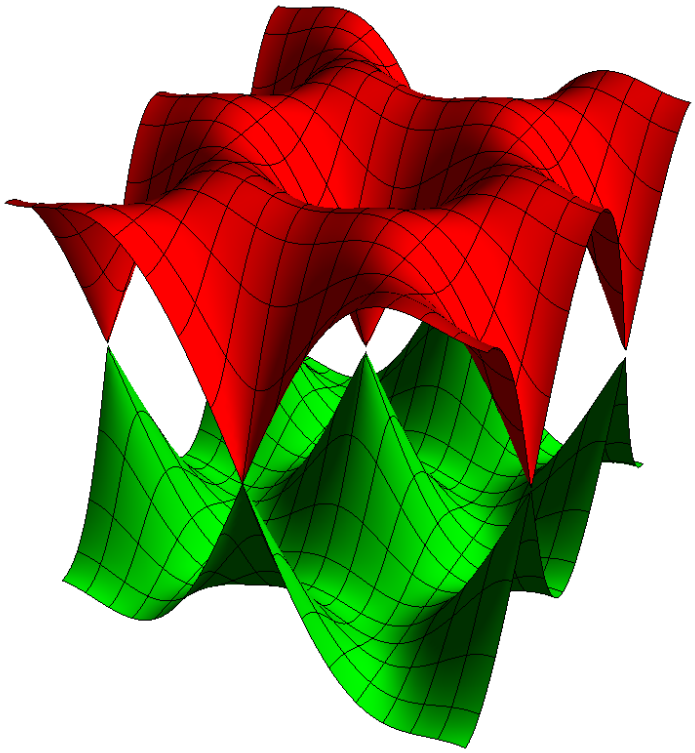


Abbildung 5.5: Die Bandstruktur des wechselwirkungsfreien KH-Modells in der Brillouinzone des Dreiecksgitters, siehe Abbildung 5.6 links. Man findet ein Halbmetall, das Dirac-Punkte an Γ und den M-Punkten besitzt.

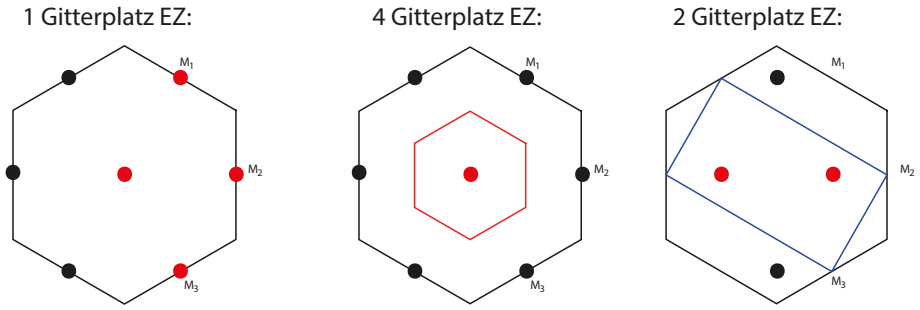


Abbildung 5.6: Durch verändern der Einheitszelle verändert sich gegebenenfalls auch die Brillouinzone. Die schwarzen und roten Punkte markieren die Dirac-Punkte innerhalb der BZ des Dreiecksgitters. Rote Dirac-Punkte liegen innerhalb der BZ des jeweiligen Modells.

5.2 Bestimmung der Phasenübergänge

Durch die Klein-Transformation des Kitaev-Heisenberg Modells des Dreiecksgitters erhält man das Heisenberg Modell des Dreieckgitters. Dadurch kann man direkt auf die bekannten magnetischen Eigenschaften des Dreiecksgitters zurückgreifen. Das Dreiecksgitter bildet in diesem Grenzfall die 120°-Néel-Ordnung aus, die hier auch noch einmal in Abbildung 5.7 dargestellt ist. Um nun auf die magnetischen Eigenschaften des Kitaev-Heisenberg Modells zurückschließen zu können, muss man die Klein-Transformation, die in Abbildung 5.2 dargestellt ist, rückwärts ausführen. Die Rücktransformation der 120°-Néel-Ordnung liefert dann eine spirale Ordnung mit einer magnetischen Einheitszelle von zwölf Gitterplätzen auf dem Dreiecksgitter. Diese Ordnung ist in Abbildung 5.8 dargestellt. Die Untersuchung des KH-Modells erweist

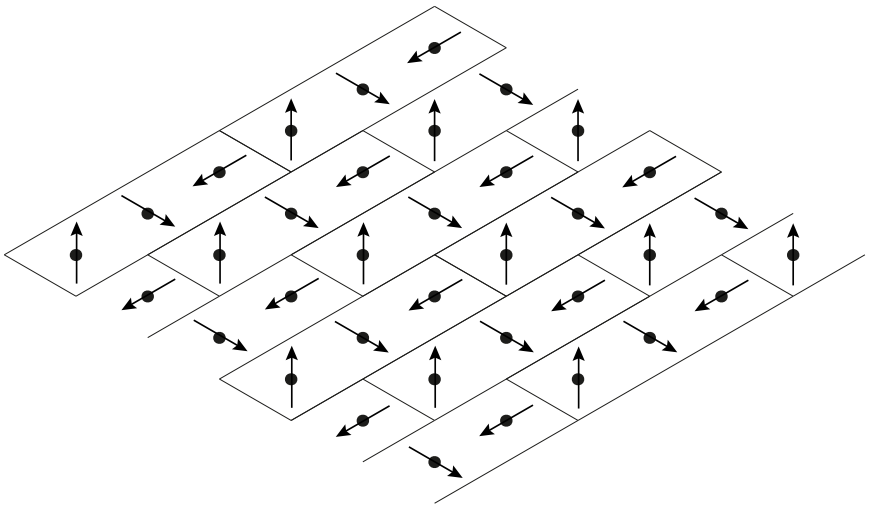


Abbildung 5.7: 120°-Néel Phase des Heisenberg Modells auf dem isotropen Dreiecksgitter mit einer magnetischen Einheitszelle von drei Gitterplätzen. Die schwarzen Boxen verdeutlichen das Muster der Spinausrichtung in dieser magnetischen geordneten Phase.

sich durchaus anspruchsvoller. Die Klein-Transformation des KH-Modells liefert uns das Flussgitter aus Abbildung 5.4. Dieses Flussgitter ist bisher unbekannt und wir können nicht auf vorhandene Ergebnisse zurückgreifen. Lediglich für den Grenzwert unendlich starker Wechselwirkung ist die magnetische Ordnung bekannt, man erhält die 120°-Néel-Ordnung des Heisenberg Modells. Diese magnetische Ordnung ist in der Regel auch die stabile magnetische Ordnung bis hin zu mittlerer Wechselwirkung. Die Einteilung des Gitters in Cluster, die als Referenzsystem für die VCA dienen, war in diesem Fall nicht ganz einfach. Man muss zum einen berücksichtigen, welche magnetische Ordnung man betrachtet, und die Periodizität dieser Ordnung auch auf dem Cluster einhalten. Das Flussgitter selbst hat aber auch eine zweiatomige Einheitszelle, das heißt man muss berücksichtigen, dass glei-

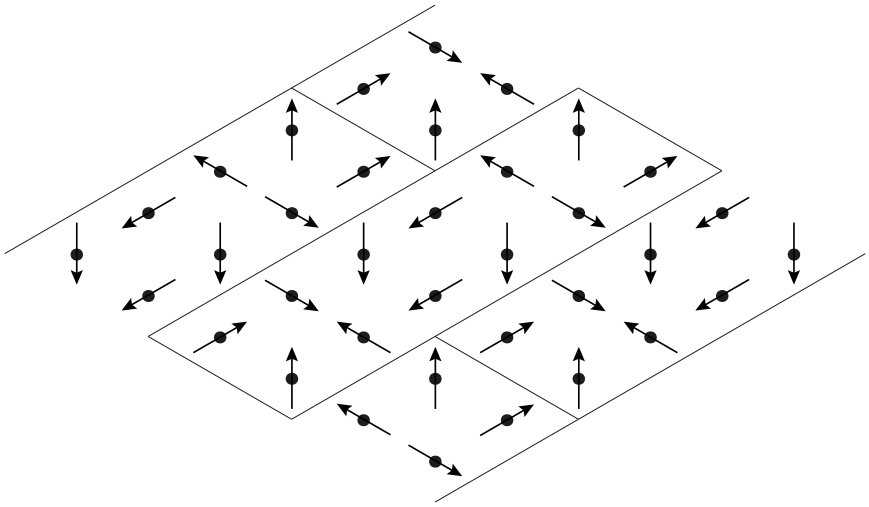


Abbildung 5.8: Spirale Phase des Kitaev-Heisenberg Modells mit einer magnetischen Einheitszelle von zwölf Gitterplätzen. Die schwarzen Boxen verdeutlichen das Muster der Spinausrichtung in dieser magnetischen geordneten Phase.

chermaßen Gitterplätze beider Untergitter im Cluster enthalten sind. Ein sechs-Platz Cluster muss ausgeschlossen werden, denn es enthält immer zwei Gitterplätze des einen Untergitters und vier Gitterplätze des anderen Untergitters. Das zwölf-Platz Cluster ist das kleinste Cluster, das wir fanden und diese Bedingungen erfüllt. Die Untergitter des Hüpfmusters sind auch auf dem zwölf-Platz Cluster nicht ganz symmetrisch verteilt. Das Cluster enthält vier Reihen, die jeweils in einem Untergitter liegen, die aber verschieden lange sind: drei (A), vier (B), drei (A), zwei (B). Aus diesem Grund ist es notwendig ein Supercluster aus zwei gespiegelten Clustern zu konstruieren, um diese Asymmetrie auszugleichen. Dieses Cluster aus Abbildung 5.9 wird im Folgenden für alle Berechnungen verwendet. Um den magnetischen Übergang von der paramagnetischen Lösung zur 120°-Néel-Ordnung zu bestimmen, wird das Weissfeld h_{120} aus Gleichung (2.63) benutzt. Die Abhängigkeit des großkanonischen Potentials von dem Weissfeld wird in Abbildung 5.10 für verschiedene Wechselwirkungsstärken gezeigt. Man findet für $U > 13t$ eine energetisch günstigere Lösung für endliches Weissfeld $h_{120} \neq 0$, das heißt für $U > 13t$ findet man im Flussgitter eine 120°-Néel Isolatorphase. Der Grenzfall des wechselwirkungsfreien Modells liefert ein Halbmetall, dessen Zustandsdichte zur Fermienergie hin linear abfällt. Wir messen nun die Einteilchenbandlücke Δ_{sp} und finden dass diese erst für Wechselwirkungsstärken $U > 9.5t$ aufgeht. Die halbmetallische Phase ist also Verglichen mit dem Halbmetall in Graphen deutlich stabiler.
In Abbildung 5.11 sind diese Ergebnisse noch einmal zusammengefasst: Die Einteilchenbandlücke gibt die Phasengrenze des Halbmetalles an und mit dem magnetischen Ordnungsparameter ist die Phasengrenze der 120°-Néel-

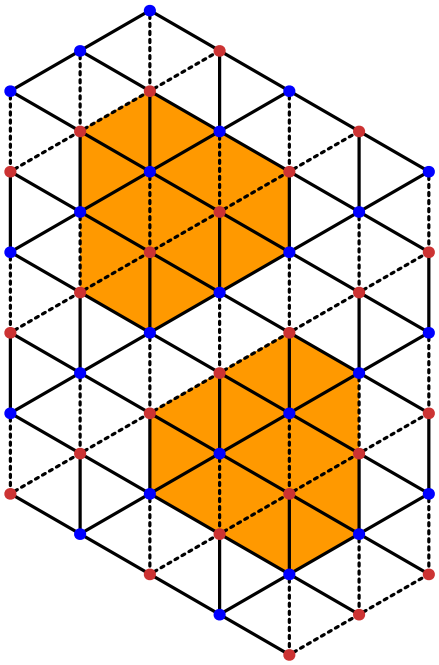


Abbildung 5.9: Das Supercluster bestehend aus zwei zwölf-Platz Clustern. Die gestrichelten Linien stellen die Hüpfen mit negativen Vorzeichen an, während die durchgehenden Verbindungen die Hüpfen mit positiven Vorzeichen sind. Es ergeben sich zwei Untergitter (A und B), die durch rote und blaue Punkte veranschaulicht sind. Um die Asymmetrie der Untergitter in einem zwölf-Platz Cluster auszugleichen ist ein gespiegeltes Cluster notwendig

Isolatorphase bestimmt. Damit findet man im Bereich $9.5t < U < 13.5t$, eine zusätzliche nichtmagnetische Isolatorphase. Diese Phase ist ein sehr guter Kandidat für eine Quanten Spinflüssigkeit. Für das Phasendiagramm des KH-Modells muss dieses Phasendiagramm, mit der Vorschrift in Abbildung 5.2, rücktransformiert werden. Da sowohl das Halbmetall als auch die nichtmagnetische-Isolatorphase keine Spinabhängigkeit besitzen, bleiben diese unverändert erhalten. Nur die 120°-Néel-Isolatorphase muss rücktransformiert werden, wie es bereits für das Kitaev-Heisenberg Modell zu beginn dieses Abschnittes diskutiert wird. Man erhält also eine spirale Ordnung mit einer magnetischen Einheitszelle von zwölf Gitterplätzen, wie in Abbildung 5.8 gezeigt wird.

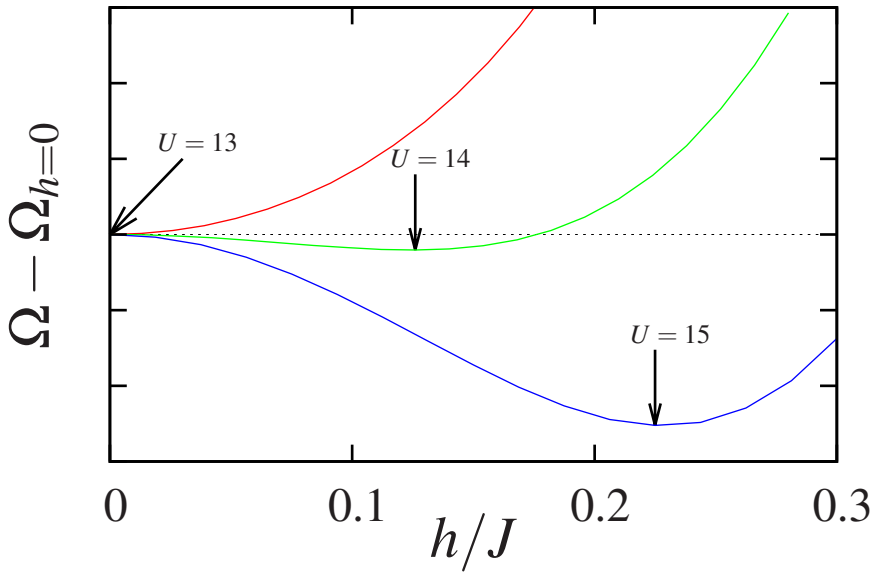


Abbildung 5.10: Das reskalierte großkanonische Potential $\Omega - \Omega_{h=0}$ als Funktion des Weissfeldes $h = h_{120}$ das die 120°-Néel-Ordnung beschreibt. Um die Abhängigkeit von der Wechselwirkung besser darzustellen h durch $J = 4t^2/U$ geteilt. Für $U > 13t$ findet man eine energetisch günstigere Lösung für endliches Weissfeld und damit die 120°-Néel-Ordnung.

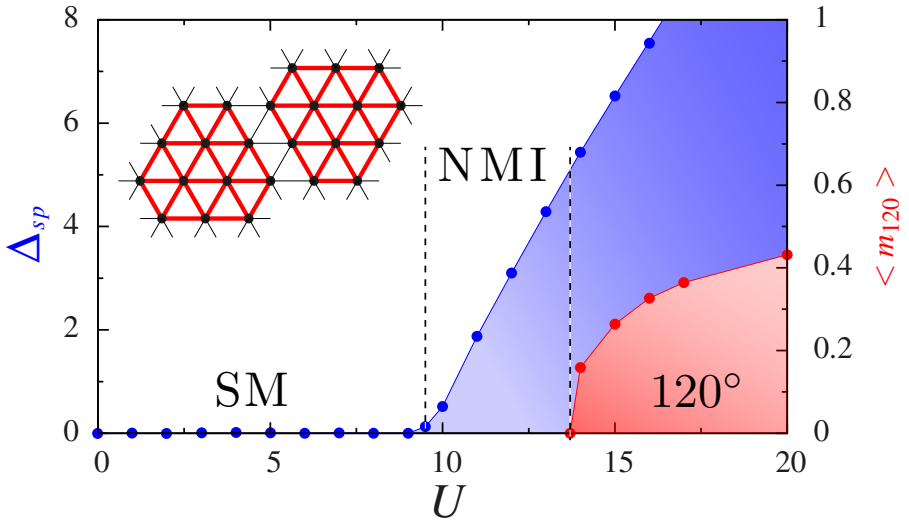


Abbildung 5.11: Wechselwirkungs-Phasendiagramm des KH-Modells. Einteilchenbandlücke Δ_{sp} und Ordnungsparameter $\langle m_{120} \rangle$ als Funktion der Wechselwirkungsstärke U. Wir finden drei Phasen: ein Halbmetall (SM), eine nichtmagnetische Isolatorphase (NMI) und eine 120°-Néel Isolatorphase(120°)

5.3 Erweiterung des Phasendiagramms der Iridate für unendliche Spin-Bahn-Kopplung

Unsere ursprüngliche Motivation, das Kitaev-Hubbard-Modell zu untersuchen, kam aus dem *sodium-iridate*-Hubbard-Modell, das ein Modell auf dem Honigwabengitter mit multidirektionalem Spin-Bahn-Kopplungsterm ist und in Abschnitt 4.4 behandelt wird. Das SIH-Modell liefert im wechselwirkungsfreien sowie für schwache Wechselwirkungen, einen $\mathbb{Z}_2$ topologischen Isolator ähnlich dem KMH-Modell. Es wurde vorgeschlagen, dass das SIH-Modell für starke Spin-Bahn-Kopplung und starke Wechselwirkung eine topologisch geordnete inkompressible Phase besitzt, welche als QSH* bezeichnet wird. Diese Annahme basiert auf Berechnungen, die mit der *slave-spin-mean-field*-Näherung durchgeführt wurden [138]. Für diesen Bereich starker Wechselwirkung und gleichzeitig starker Spin-Bahn-Kopplung gibt es aber bisher noch keine weiteren Arbeiten. Lediglich die Grenzfälle des wechselwirkungsfreien Systems und unendlicher Wechselwirkung sind verstanden. Das wechselwirkungsfreie System gibt ohne Spin-Bahn-Kopplung sowie mit unendlicher Spin-Bahn Kopplung ein Halbmetall und ist dazwischen also für endliche Spin-Bahn Kopplung ein topologischer Isolator. Im Grenzfall unendlicher Wechselwirkung findet man für schwache Spin-Bahn Kopplung einen rotationssymmetrischen Néel-Antiferromagnet, der dann in eine inkommensurable magnetische Phase übergeht, deren Ordnungsvektor im Grenzfall unendlicher Spin-Bahn Kopplung, die spirale Ordnung besitzt, die wir hier für das Kitaev-Heisenberg Modell diskutiert haben. Im Bereich mittlerer Wechselwirkung gibt es aber noch keine weiteren Ergebnisse, was die Komplexität des Problems auch veranschaulicht. Im Grenzfall unendlicher Spin-Bahn Kopplung entkoppeln die beiden Untergitter des Honigwabengitters. Man erhält zwei identische entkoppelte Dreiecksgitter Modelle, die genau dem KH-Modell aus Gleichung (5.1) entsprechen. Die Studie des KH-Modells liefert uns also weitere Erkenntnisse über das Phasendiagramm des SIH-Modells im Grenzfall unendlicher Spin-Bahn-Kopplung. Wir haben die Ergebnisse des KH-Modells und des SIH-Modells in einem schematischen Phasendiagramm noch einmal in Abbildung 5.12 zusammengefasst. Ohne Spin-Bahn-Kopplung finden wir natürlich die Ergebnisse von Graphen, ein Halbmetall für schwache Wechselwirkung und einen Néel-Antiferromagnet für starke Wechselwirkung. Für endliche Spin-Bahn Kopplung geht das Halbmetall direkt in einen $\mathbb{Z}_2$ topologischen Isolator über, der Néel-Antiferromagnet bleibt zunächst erhalten. Im Rahmen der VCA war es uns nicht möglich den Übergang der Néel-Phase durch den Bereich der Inkommensurabilität zu verfolgen. Erst der Grenzfall unendlicher Spin-Bahn Kopplung liefert uns wieder aufschlussreiche Ergebnisse. Hier finden wir für schwache Wechselwirkungen ebenfalls ein Halbmetall und für starke Wechselwirkungen eine spiralmagnetische Ordnung. In einem Bereich mittlerer Wechselwirkung finden wir eine nichtma-

gnetische Isolatorphase. Wir können im Rahmen der VCA nicht sagen, ob diese NMI Phase adiabatisch mit der QSH* Phase verbunden ist oder nicht. Unsere Ergebnisse sind aber mit der Existenz einer weiteren nichtmagnetischen Phase (wie z.B. der QSH*-Phase) kompatibel.

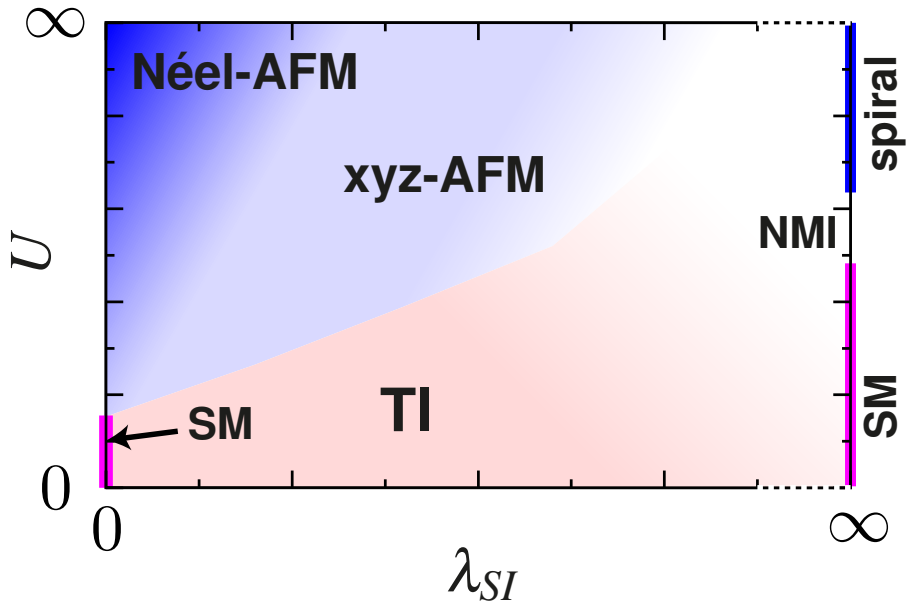


Abbildung 5.12: Erweiterung des VCA-Phasendiagrammes des SIH-Modells um den Grenzfall $\lambda_{SI} \to \infty$. Für endliche Spin-Bahn-Kopplung erhält man, die in Abbildung 4.38 gezeigten Phasen: ein Halbmetall (SM) und einen topologischen Isolator, einen rotationssymmetrischen Antiferromagnet (Néel-AFM) und einen Antiferromagneten mit pseudo *easy-plane* Ordnung (xyz-AFM). Im Grenzfall unendlicher Spin-Bahn-Kopplung erhält man effektiv ein Dreiecksgitter, das für starke Wechselwirkung eine spiralmagnetische Phase aufweist. Für schwache Wechselwirkung erhält man auch hier ein Halbmetall (SM). Dazwischen bildet sich für mittlere Wechselwirkungsstärken $9.5t < U < 13.5t$ eine nichtmagnetische Isolatorphase (NMI) aus.

Kapitel 6

Fazit

In dieser Arbeit wurden verschiedene Systeme auf hexagonalen Gittern untersucht. Um ein möglichst realistisches Bild zu erhalten, wurde der Einfluss der Wechselwirkung in Form einer reinen lokalen Wechselwirkung untersucht. Hierzu dient das Hubbard-Modell, das eines der einfachsten Modelle der Festkörperphysik darstellt. Die Methode, die in dieser Arbeit vorgestellt wurde und mit deren Hilfe diese Systeme analysiert wurden, ist die variationelle Cluster Näherung (engl. *variational cluster approximation* VCA), die auf der Selbstenergie-Funktional-Theorie basiert. Diese besagt, dass man mit Hilfe eines Referenzsystems Testselbstenergien erzeugen kann, mit denen man das Originalsystem möglichst genau beschreiben kann. Das Referenzsystem und das Originalsystem dürfen sich hierbei nur um Einteilchenoperatoren unterscheiden. In dieser Arbeit wurde die VCA nicht mehr nur als Methode für starke Wechselwirkung eingesetzt, sondern es wurde der gesamte Bereich der Wechselwirkungsstärke untersucht. Gerade im Bereich mittlerer bis schwacher Stärke der Wechselwirkung passiert auf den untersuchten hexagonalen Systemen die entscheidende Physik und man findet hier die Phasenübergänge. Um die Physik bei dieser relativ schwachen Wechselwirkung in der VCA korrekt wiederzugeben, haben wir gezeigt, dass es notwendig ist, neben dem chemischen Potential und den symmetriebrechenden Weissfeldern, auch die Hüpfamplitude zu variieren, um die Testselbstenergie des Referenzsystems zu optimieren. Einerseits werden die Ergebnisse bei schwachen Wechselwirkungsstärken erst durch die Variation des Hüpfens physikalisch sinnvoll (siehe Abbildung 2.9) und andererseits wird auch die Clusterabhängigkeit der Ergebnisse verringert, und somit ein allgemeingültigeres Ergebnis erzielt.

Zunächst wurde der Einfluss eines externen Magnetfeldes auf das isotrope Dreiecksgitter untersucht. Hierbei findet man aufgrund der Konkurrenz der planaren 120°-Néel-Ordnung und der kollinearen UUD-Ordnung in dem frustrierten quantenmechanischen System ein Magnetisierungsplateau. Der Eintritt in die UUD-Phase in dem Magnetisierungsplateau und die Größe

des Plateaus hängen von der Wechselwirkungsstärke ab, wogegen die Magnetisierungskurven oberhalb des Magnetisierungsplateaus nahezu identisch sind für verschiedene Wechselwirkungsstärken (siehe Abbildung 3.3). Aus der Abhängigkeit des Magnetisierungsplateaus lässt sich nun experimentell auf die effektive Wechselwirkungsstärke des Systems schließen (siehe Abbildung 3.4), und damit das theoretische Modell kalibrieren.
Das anisotrope Dreiecksgitter, ist z.B. die Gitterstruktur für eine ganze Klasse von organischen Ladungstransfersalzen, die sich teilweise sehr ähnlich sind, sich aber z.B. in ihrem magnetischen Verhalten sehr stark unterscheiden. Wir haben das Wechselwirkungs-Anisotropie Phasendiagramm des anisotropen Dreiecksgitters gezeigt (siehe Abbildung 3.10), das eine nichtmagnetische Isolatorphase (NMI) in der Umgebung des isotropen Dreiecksgitters für mittlere Wechselwirkung zeigt. Die NMI-Phase ist umgeben von einem Metall für schwache Wechselwirkung, einer Néel-AFM Isolatorphase des Quadratgitters für schwächere Anisotropie und von der 120°-Néel-AFM Isolatorphase des isotropen Dreiecksgitters für starke Wechselwirkung. Wir konnten die zwei genannten prototypischen Materiale κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu[N(CN)$_2$]Cl und κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu$_2$(CN)$_3$ in diesem Phasendiagramm einordnen, wobei das erstere in der magnetischen und das letztere in der nichtmagnetischen Phase liegt, was mit den experimentellen Funden übereinstimmt.
Die NMI-Phase im Phasendiagramm des anisotropen Dreiecksgitters ist ein möglicher Kandidat einer Spinflüssigkeit und wir haben hier den Einfluss des Ladungsfreiheitsgrades, durch die Wechselwirkung, und der Frustration auf die Ausdehnung dieser Phase untersucht. Wir finden die NMI-Phase übereinstimmend mit verschiedenen Clustergrößen ($L_c = 6, 12$). Die Verbesserung der Testselbstenergie des Referenzsystems durch die Variation des Hüpfens, die in vergleichbaren Arbeiten bisher vernachlässigt wurde, führt zu einer Erhöhung des Übergangs vom Metall zum NMI und damit zu einer Verkleinerung der NMI-Phase insgesamt. Dennoch bleibt das Phasendiagramm qualitativ bestehen und damit die NMI-Phase stabil.

Im Anschluss wurden verschiedene Modell auf dem Honigwabengitter untersucht, die mit Hilfe von Spin-Bahn-Kopplung in topologische Isolatoren (TI) gewandelt wurden. Hierbei wurden neben den magnetischen Ordnungsparametern und der Spektralfunktion, die aus der Greenschen Funktion des Bulk berechnet werden, auch die Spektralfunktion der Randzustände berechnet, womit man eine charakteristische Eigenschaft dieser TI darstellen kann: helikale leitende Randzustände. Außerdem haben wir die topologische Invariante eingeführt, mit der ein TI charakterisiert wird. Diese wird für inversionssymmetrische Systeme mit einer vereinfachten Formel numerisch aus der Greenschen Funktion der VCA berechnet.
Auch im Kane-Mele-Hubbard-Modell (KMH-Modell) hat sich gezeigt, dass die Optimierung der Testselbstenergie durch die Variation des Hüpfens notwendig ist. Erst durch die Variation des Hüpfens erhält man einen physi-

kalisch sinnvollen Verlauf der Phasengrenze des TI, wie z.B. in Abbildung 2.9 gezeigt. Aber auch die Frage, ob es im Rahmen der VCA eine triviale NMI-Phase geben kann, für kleine Spin-Bahn-Kopplung unterhalb der antiferromagnetischen Phase, kann hierdurch klar entschieden und verneint werden, denn durch die Variation des Hüpfens wird die paramagnetische Phasengrenze des TI weiter erhöht, während die Phasengrenze des AFM nahezu unverändert aber mit leichter Tendenz zu schwächerer Wechselwirkung bleibt. Daraus folgt, dass ein direkter Phasenübergang aus der TI-Phase in die AFM-Phase stattfindet, bei dem die Bandlücke des Bulks nicht vollständig geschlossen ist, aber die Randzustände verschwinden.
Durch hinzufügen der Rashba-Spin-Bahn-Kopplung zum KMH-Modell fanden wir zwei neue Phasen. Durch die Berechnung der lokalen Zustandsdichte, der Spektralfunktion des Bulks und der Randzustände sowie der Magnetisierung wurde das vollständige Phasendiagramm bestimmt. Wir finden ein Halbmetall (SM), einen TI, eine topologische Halbmetall-Phase (engl. *topological semimetal* TS) und ein triviales Metall für schwache Wechselwirkung. Für starke Wechselwirkung finden wir zunächst für schwache Spin-Bahn-Kopplung einen XY-AFM, der dann von starker Rashba-Spin-Bahn-Kopplung unterdrückt wird und wir keine weitere Ordnung finden. Rashba-Spin-Bahn-Kopplung führt zu besonderen metallischen Phasen. So zeigt bereits die wechselwirkungsfreie Bandstruktur für starke KM-Kopplung eine TS unterhalb des Übergangs zum topologisch trivialen Metall bei $\lambda_R < 2\sqrt{3}\lambda$. Aufgrund der starken Verbiegung der Bänder durch den Rashba-Term überlappen das Valenz- und das Leitungsband für verschiedene Wellenvektoren, so dass die Bandlücke der lokalen Zustandsdichte geschlossen ist, aber für jeden Wellenvektor eine direkte Bandlücke bestehen bleibt. Eine weitere exotische Phase, die jedoch hier nur als ein Artefakt des Referenzsystems bestehend aus acht-Platz Clustern erscheint, ist eine AFM-Halbmetallphase. Diese Phase zeigt, dass die Paarung aus Bandverbiegung durch die Rashba-Kopplung und die AFM Präferenz, hier durch das acht-Platz Cluster, die Möglichkeit für diese AFM-Halbmetallphase schafft. Es wird spannend den einen oder anderen Effekt in zukünftigen Experimenten zu untersuchen, die den Rashba-Term entweder als externes Feld oder als intrinsischen Effekt beinhaltet.
In Na_2IrO_3 ist die Spin-Bahn-Kopplung aufgrund der schweren Iridiumatome sehr stark und in der Größenordnung der Wechselwirkungsstärke $U \sim \lambda$. Das SI-Modell (aus dem Englischen abgeleitet *sodium-iridate*) wird durch eine multidirektionale Spin-Bahn-Kopplung beschrieben, die die S_z Spiegelsymmetrie bricht, die im KMH-Modell noch erhalten blieb. Dies führt dazu, dass im Quanten-Spin-Hall (QSH) Zustand die leitenden Randkanäle nicht mehr spinpolarisiert sind. Das Phasendiagramm des SIH-Modells enthält, neben dem TI, für verschwindende Spin-Bahn-Kopplung und schwache Wechselwirkung natürlich ein SM. Starke Wechselwirkung führt bei schwacher Kopplung zu einer Néel-AFM Phase, die dann übergeht in eine xyz-AFM Ordnung.

Für starke Spin-Bahn-Kopplung wird ein Bereich inkommensurabler spiraler magnetischer Ordnungen vermutet. Die xyz-AFM Phase ist möglicherweise die kommensurable Signatur dieser inkommensurablen Ordnung, die wir mit der VCA durch die Festlegung auf die Cluster erhalten. Die Phasengrenze zwischen rotationssymmetrischem Néel-AFM und dem xyz-AFM stimmt auffallend gut mit der Phasengrenze überein, die Rüegg und Fiete [138] mit einer *mean-field*-Methode bestimmt und die Reuther *et al.* [135] für den Grenzfall unendlich starker Wechselwirkung gefunden haben.

Zuletzt wurde noch das Kitaev-Hubbard (KH) Modell untersucht, in dem die Konkurrenz aus frustriertem Magnetismus für starke Wechselwirkung und Dirac-Halbmetallizität bei schwacher Wechselwirkung zu einer ausgedehnten NMI-Phase führt. Das KH-Modell ist ein Hubbard-artiges Modell, das ein imaginäres richtungs und spin-abhängiges nächste Nachbar Hüpfen besitzt. Wir finden für das KH-Modell mit Hilfe einer Klein-Transformation eine magnetisch geordnete Phase mit einer magnetischen Einheitszelle von zwölf Gitterplätzen oberhalb von $U = 13.5t$. Die halbmetallische Phase dieses Modells ist, verglichen mit dem Honigwabengitter, sehr stabil und reicht bis $U = 9.5t$. Die NMI-Phase des KH-Modells ist also viermal so groß wie die NMI-Phase des isotropen Dreiecksgitters. Diese NMI-Phase ist ein sehr guter Kandidat für eine Quanten-Spinflüssigkeit, denn das Modell erfüllt alle diskutierten notwendigen Eigenschaften, um eine Spinflüssigkeit hervorzubringen: Halbmetallizität und Frustration.

Wir haben gezeigt, dass die VCA eine sehr starke Methode darstellt, in einem Bereich in dem Frustrationen eine sehr starke Rolle spielen und andere Methoden sich geschlagen geben müssen. Wir haben die VCA auch weiterentwickelt für den Bereich schwacher bis mittlerer Wechselwirkung, durch die Optimierung der Selbstenergie mit der Variation des Hüpfens.
Dennoch sind wir auch in dieser Arbeit teilweise an die Grenzen der VCA gestoßen, denn die Clustergröße ist durch den Hilbertraum begrenzt, wodurch z.B. auch die Größe einer magnetischen Einheitszelle limitiert ist, die untersucht werden kann.
Ein wichtiger Entwicklungsschritt wäre es also weiterhin größere Cluster zu untersuchen, um möglichst vielfältige Ordnungen innerhalb des Clusters zu stabilisieren. Diese Ordnungen beinhalten einerseits magnetische aber auch topologische Ordnungen, die auch sehr große Cluster voraussetzen.

Verzeichnis wichtiger Abkürzungen

VCA variationelle Cluster Näherung (engl. *variational cluster approximation*)

SFA Selbstenergie Funktional Näherung (engl. *selfenery functional approach*)

CPT Cluster Störungstheorie (engl. *cluster perturbation theory*)

QMC Quanten-Monte-Carlo

AFM Antiferromagnet

NMI nichtmagnetischer Isolator

TI topologischer Isolator

QSH Quanten-Spin-Hall

SM Halbmetal (engl. *semimetal*)

TS topologische Halbmetall-Phase (engl. *topological semimetal*)

SO Spin-Bahn (engl. *spin-orbit*)

KM Kane-Mele

KMH Kane-Mele-Hubbard

SI Natrium-Iridate (engl. *sodium iridate*)

SIH SI-Hubbard

KH Kitaev-Hubbard

Literaturverzeichnis

[1] M. Laubach, R. Thomale, W. Hanke, and G. Li. *Competing magnetism, spin liquid candidate regime, and adiabatic cooling in the anisotropic triangular Hubbard model*. arXiv:1401.8198.

[2] M. Laubach, J. Reuther, R. Thomale, and S. Rachel. *Rashba spin orbit coupling in the Kane-Mele-Hubbard model*. arXiv:1312.2934.

[3] G. Li, M. Laubach, A. Fleszar, and W. Hanke. *Geometrical frustration and the competing phases of the Sn/Si(111)* $\sqrt{3} \times \sqrt{3}R30^{\circ}$ *surface systems*. Physical Review B **83**, 041104 (2011).

[4] J. C. Budich, R. Thomale, G. Li, M. Laubach, and S.-C. Zhang. *Fluctuation-induced topological quantum phase transitions in quantum spin-Hall and anomalous-Hall insulators*. Physical Review B **86**, 201407 (2012).

[5] J. Vannimenus and G. Toulouse. *Theory of the frustration effect. II. Ising spins on a square lattice*. Journal of Physics C: Solid State Physics **10**, L537 (1977).

[6] Z. Weihong, J. Oitmaa, and C. J. Hamer. *Second-order spin-wave results for the quantum XXZ and XY models with anisotropy*. Physical Review B **44**, 11869 (1991).

[7] A. P. Ramirez. *Strongly Geometrically Frustrated Magnets*. Annual Review of Materials Science **24**, 453 (1994).

[8] L. Balents. *Spin liquids in frustrated magnets*. Nature **464**, 199 (2010).

[9] P. W. Anderson. *Resonating valence bonds: A new kind of insulator?*. Materials Research Bulletin **8**, 153 (1973).

[10] K. Kanoda. *Electron correlation, metal-insulator transition and superconductivity in quasi-2D organic systems, (ET)$_2$X*. Physica C: Superconductivity **282–287**, 299 (1997).

[11] R. H. McKenzie. *Similarities Between Organic and Cuprate Superconductors*. Science **278**, 820 (1997).

[12] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito. *Spin Liquid State in an Organic Mott Insulator with a Triangular Lattice.* Physical Review Letters **91**, 107001 (2003).

[13] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito. *Emergence of inhomogeneous moments from spin liquid in the triangular-lattice Mott insulator κ-(ET)$_2$Cu$_2$(CN)$_3$.* Physical Review B **73**, 140407 (2006).

[14] P. Limelette, P. Wzietek, S. Florens, A. Georges, T. A. Costi, C. Pasquier, D. Jérome, C. Mézière, and P. Batail. *Mott Transition and Transport Crossovers in the Organic Compound κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu[N(CN)$_2$]Cl.* Physical Review Letters **91**, 016401 (2003).

[15] Y. Kurosaki, Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, and G. Saito. *Mott Transition from a Spin Liquid to a Fermi Liquid in the Spin-Frustrated Organic Conductor κ-(ET)$_2$Cu$_2$(CN)$_3$.* Physical Review Letters **95**, 177001 (2005).

[16] M. Q. Weng, D. N. Sheng, Z. Y. Weng, and R. J. Bursill. *Spin-liquid phase in an anisotropic triangular-lattice Heisenberg model: Exact diagonalization and density-matrix renormalization group calculations.* Physical Review B **74**, 012407 (2006).

[17] S. Yunoki and S. Sorella. *Two spin liquid phases in the spatially anisotropic triangular Heisenberg model.* Physical Review B **74**, 014408 (2006).

[18] C. L. Kane and E. J. Mele. *Z_2 Topological Order and the Quantum Spin Hall Effect.* Physical Review Letters **95**, 146802 (2005).

[19] C. L. Kane and E. J. Mele. *Quantum Spin Hall Effect in Graphene.* Physical Review Letters **95**, 226801 (2005).

[20] Y. Yao, F. Ye, X.-L. Qi, S.-C. Zhang, and Z. Fang. *Spin-orbit gap of graphene: First-principles calculations.* Physical Review B **75**, 041401 (2007).

[21] H. Min, J. E. Hill, N. A. Sinitsyn, B. R. Sahu, L. Kleinman, and A. H. MacDonald. *Intrinsic and Rashba spin-orbit interactions in graphene sheets.* Physical Review B **74**, 165310 (2006).

[22] M. König, S. Wiedmann, C. Brüne, A. Roth, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, X.-L. Qi, and S.-C. Zhang. *Quantum Spin Hall Insulator State in HgTe Quantum Wells.* Science **318**, 766 (2007).

[23] A. Roth, C. Brune, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, J. Maciejko, X.-L. Qi, and S.-C. Zhang. *Nonlocal Transport in the Quantum Spin Hall State.* Science **325**, 294 (2009).

[24] C. H. Kim, H. S. Kim, H. Jeong, H. Jin, and J. Yu. *Topological Quantum Phase Transition in* 5*d Transition Metal Oxide* Na_2IrO_3. Physical Review Letters **108**, 106401 (2012), motivation shitade modell.

[25] A. Shitade, H. Katsura, J. Kuneš, X.-L. Qi, S.-C. Zhang, and N. Nagaosa. *Quantum Spin Hall Effect in a Transition Metal Oxide* Na_2IrO_3. Physical Review Letters **102**, 256403 (2009).

[26] M. Potthoff, M. Aichhorn, and C. Dahnken. *Variational Cluster Approach to Correlated Electron Systems in Low Dimensions*. Physical Review Letters **91**, 206402 (2003).

[27] D. Sénéchal, D. Perez, and M. Pioro-Ladrière. *Spectral Weight of the Hubbard Model through Cluster Perturbation Theory*. Physical Review Letters **84**, 522 (2000).

[28] M. Potthoff. *Self-energy-functional approach to systems of correlated electrons*. The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems **32**, 429 (2003).

[29] M. Potthoff. *Self-energy-functional approach: Analytical results and the Mott-Hubbard transition*. The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems **36**, 335 (2003).

[30] M. Potthoff. *Dynamical variational principles for strongly correlated electron systems*. Advances in Solid State Physics **45**, 135 (2005).

[31] G. Li, P. Höpfner, J. Schäfer, C. Blumenstein, S. Meyer, A. Bostwick, E. Rotenberg, R. Claessen, and W. Hanke. *Magnetic order in a frustrated two-dimensional atom lattice at a semiconductor surface*. Nature Communications **4**, 1620 (2013).

[32] S. Pairault, D. Sénéchal, and A.-M. S. Tremblay. *Strong-Coupling Expansion for the Hubbard Model*. Physical Review Letters **80**, 5389 (1998).

[33] S. Pairault, D. Sénéchal, and A. M. S. Tremblay. *Strong-coupling perturbation theory of the Hubbard model*. European Physical Journal B **16**, 85–105 (2000).

[34] E. Dagotto. *Correlated electrons in high-temperature superconductors*. Reviews of Modern Physics **66**, 763 (1994).

[35] J. K. Cullum and R. A. Willoughby, *Lanczos Algorithms for Large Symmetric Eigenvalue Computations Volume 1: Theory (Progress in Scientific Computing)* (Birkhäuser Boston, 1984).

[36] Cullum and Willoughby, *Lanczos Algorithms for Large Symmetric Eigenvalue Computations Volume 2: Programs (Progress in Scientific Computing)* (Birkhäuser Boston, 1984).

[37] J. Hubbard. *Electron Correlations in Narrow Energy Bands.* Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences **276**, 238 (1963).

[38] J. Luttinger and J. Ward. *Ground-State Energy of a Many-Fermion System. II.* Physical Review **118**, 1417 (1960).

[39] G. Baym and L. Kadanoff. *Conservation Laws and Correlation Functions.* Physical Review **124**, 287 (1961).

[40] C. Lanczos. *An iteration method for the solution of the eigenvalue problem of linear differential and integral operators.* Journal of research of the National Bureau of Standards **45**, 255 (1950).

[41] E. Gagliano, E. Dagotto, A. Moreo, and F. Alcaraz. *Correlation functions of the antiferromagnetic Heisenberg model using a modified Lanczos method.* Physical Review B **34**, 1677 (1986).

[42] Y. Saad, *Iterative Methods for Sparse Linear Systems, Second Edition* (Society for Industrial and Applied Mathematics, 2003).

[43] H. Q. Lin and J. E. Gubernatis. *Exact Diagonalization Methods for Quantum Systems.* Computers in Physics **7**, 400 (1993).

[44] O. A. Starykh, H. Katsura, and L. Balents. *Extreme sensitivity of a frustrated quantum magnet:* Cs_2CuCl_4. Physical Review B **82**, 014421 (2010).

[45] H.-Y. Yang, A. M. Läuchli, F. Mila, and K. P. Schmidt. *Effective Spin Model for the Spin-Liquid Phase of the Hubbard Model on the Triangular Lattice.* Physical Review Letters **105**, 267204 (2010).

[46] B. Kyung. *Electronic Properties of the Hubbard Model on a Frustrated Triangular Lattice.* Physical Review B **75,**, 033102 (2007).

[47] P. Sahebsara and D. Sénéchal. *Hubbard Model on the Triangular Lattice: Spiral Order and Spin Liquid.* Physical Review Letters **100**, 136402 (2008).

[48] D. H. Lee, J. D. Joannopoulos, J. W. Negele, and D. P. Landau. *Discrete-Symmetry Breaking and Novel Critical Phenomena in an Antiferromagnetic Planar (*XY*) Model in Two Dimensions.* Physical Review Letters **52**, 433 (1984).

[49] Y. Fujii, T. Nakamura, H. Kikuchi, M. Chiba, T. Goto, S. Matsubara, K. Kodama, and M. Takigawa. *NMR study of $S = 1/2$ quasi-two-dimensional antiferromagnet Cs_2CuBr_4*. Physica B: Condensed Matter **346–347**, 45 (2004), proceedings of the 7th International Symposium on Research in High Magnetic Fields.

[50] J. Alicea, A. V. Chubukov, and O. A. Starykh. *Quantum Stabilization of the 1/3-Magnetization Plateau in Cs_2CuBr_4*. Physical Review Letters **102**, 137201 (2009).

[51] N. A. Fortune, S. T. Hannahs, Y. Yoshida, T. E. Sherline, T. Ono, H. Tanaka, and Y. Takano. *Cascade of magnetic-field-induced quantum phase transitions in a spin 1/2 triangular-lattice antiferromagnet*. Physical Review Letters **102**, 257201 (2008).

[52] M. V. Gvozdikova, P.-E. Melchy, and M. E. Zhitomirsky. *Magnetic phase diagrams of classical triangular and kagome antiferromagnets*. Journal of Physics Condensed Matter **23**, 164209 (2011).

[53] T. Tay and O. I. Motrunich. *Variational Studies of Triangular Heisenberg Antiferromagnet in Magnetic Field*. Physical Review B **81**, 165116 (2010).

[54] K. Frei and H. J. Bernstein. *Method for Determining Magnetic Susceptibilities by NMR*. The Journal of Chemical Physics **37**, 1891 (1962).

[55] F. Kagawa, K. Miyagawa, and K. Kanoda. *Unconventional critical behaviour in a quasi-two-dimensional organic conductor*. Nature **436**, 534 (2005).

[56] K. Miyagawa, A. Kawamoto, Y. Nakazawa, and K. Kanoda. *Antiferromagnetic Ordering and Spin Structure in the Organic Conductor, κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu[N(CN)$_2$]Cl*. Physical Review Letters **75**, 1174 (1995).

[57] S. Ohira, Y. Shimizu, K. Kanoda, and G. Saito. *Spin Liquid State in κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu$_2$(CN)$_3$ Studied by Muon Spin Relaxation Method*. Journal of Low Temperature Physics **142**, 153 (2006).

[58] C. Nave and P. Lee. *Transport properties of a spinon Fermi surface coupled to a U(1) gauge field*. Physical Review B **76**, 235124 (2007).

[59] Y. Qi, C. Xu, and S. Sachdev. *Dynamics and Transport of the Z2 Spin Liquid: Application to κ-(ET)$_2$Cu$_2$(CN)$_3$*. Physical Review Letters **102**, 176401 (2009).

[60] C. Xu and S. Sachdev. *Global phase diagrams of frustrated quantum antiferromagnets in two dimensions: Doubled Chern-Simons theory*. Physical Review B **79**, 064405 (2009).

[61] S.-S. Lee and P. Lee. *U(1) Gauge Theory of the Hubbard Model: Spin Liquid States and Possible Application to κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu$_2$(CN)$_3$.* Physical Review Letters **95**, 036403 (2005).

[62] S. Yamashita, Y. Nakazawa, M. Oguni, Y. Oshima, H. Nojiri, Y. Shimizu, K. Miyagawa, and K. Kanoda. *Thermodynamic properties of a spin-1/2 spin-liquid state in a κ-type organic salt.* Nature Physics **4**, 459 (2008).

[63] M. Yamashita, N. Nakata, Y. Kasahara, T. Sasaki, N. Yoneyama, N. Kobayashi, S. Fujimoto, T. Shibauchi, and Y. Matsuda. *Thermal-transport measurements in a quantum spin-liquid state of the frustrated triangular magnet -(BEDT-TTF)$_2$Cu$_2$(CN)$_3$.* Nature Physics **5**, 44 (2009).

[64] K. Kanoda and R. Kato. *Mott Physics in Organic Conductors with Triangular Lattices.* Annual Review of Condensed Matter Physics **2**, 167 (2011).

[65] B. J. Powell and R. H. McKenzie. *Quantum frustration in organic Mott insulators: from spin liquids to unconventional superconductors.* Reports on Progress in Physics **74**, 056501 (2011).

[66] H. C. Kandpal, I. Opahle, Y.-Z. Zhang, H. O. Jeschke, and R. Valentí. *Revision of Model Parameters for κ-Type Charge Transfer Salts: An AbInitio Study.* Physical Review Letters **103**, 067004 (2009).

[67] K. Nakamura, Y. Yoshimoto, T. Kosugi, R. Arita, and M. Imada. *Ab initio Derivation of Low-Energy Model for κ-ET Type Organic Conductors.* Journal of the Physical Society of Japan **78**, 083710 (2009).

[68] K. Nakamura, Y. Yoshimoto, and M. Imada. *Ab initio two-dimensional multiband low-energy models of EtMe$_3$Sb[Pd(dmit)$_2$]$_2$ and κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu(NCS)$_2$ with comparisons to single-band models.* Physical Review B **86**, 205117 (2012).

[69] D. Heidarian, S. Sorella, and F. Becca. *Spin- (1)/(2) Heisenberg model on the anisotropic triangular lattice: From magnetism to a one-dimensional spin liquid.* Physical Review B **80**, 012404 (2009).

[70] S. Ghamari, C. Kallin, S.-S. Lee, and E. S. Sørensen. *Order in a spatially anisotropic triangular antiferromagnet.* Physical Review B **84**, 174415 (2011).

[71] E. Manousakis. *The spin-1/2 Heisenberg antiferromagnet on a square lattice and its application to the cuprous oxides.* Reviews of Modern Physics **63**, 1 (1991).

[72] B. Bernu, P. Lecheminant, C. Lhuillier, and L. Pierre. *Exact spectra, spin susceptibilities, and order parameter of the quantum Heisenberg antiferromagnet on the triangular lattice.* Physical Review B **50**, 10048 (1994).

[73] L. Capriotti, A. Trumper, and S. Sorella. *Long-Range Néel Order in the Triangular Heisenberg Model.* Physical Review Letters **82**, 3899 (1999).

[74] S. White and A. Chernyshev. *Néel Order in Square and Triangular Lattice Heisenberg Models.* Physical Review Letters **99**, 127004 (2007).

[75] J. Reuther and R. Thomale. *Functional renormalization group for the anisotropic triangular antiferromagnet.* Physical Review B **83**, 024402 (2011).

[76] T. Watanabe, H. Yokoyama, Y. Tanaka, and J. ichiro Inoue. *Superconductivity and a Mott Transition in a Hubbard Model on an Anisotropic Triangular Lattice.* Journal of the Physical Society of Japan **75,**, 074707 (2006).

[77] T. Watanabe, H. Yokoyama, Y. Tanaka, and J. Inoue. *Predominant magnetic states in the Hubbard model on anisotropic triangular lattices.* Physical Review B **77**, 214505 (2008).

[78] S. Dayal, R. T. Clay, and S. Mazumdar. *Absence of long-range superconducting correlations in the frustrated 1/2-filled band Hubbard model.* Physical Review B **85,**, 165141 (2012).

[79] T. Yoshioka, A. Koga, and N. Kawakami. *Quantum Phase Transitions in the Hubbard Model on a Triangular Lattice.* Physical Review Letters **103**, 036401 (2009).

[80] M. Z. Hasan and C. L. Kane. *Colloquium : Topological insulators.* Reviews of Modern Physics **82**, 3045 (2010).

[81] X.-L. Qi and S.-C. Zhang. *Topological insulators and superconductors.* Reviews of Modern Physics **83**, 1057 (2011).

[82] B. A. Bernevig, *Topological Insulators and Topological Superconductors* (Princeton University Press, 2013).

[83] B. A. Bernevig, T. L. Hughes, and S.-C. Zhang. *Quantum Spin Hall Effect and Topological Phase Transition in HgTe Quantum Wells.* Science **314**, 1692 (2006).

[84] B. A. Bernevig and S.-C. Zhang. *Quantum Spin Hall Effect.* Physical Review Letters **96**, 106802 (2006).

[85] C. Weeks, J. Hu, J. Alicea, M. Franz, and R. Wu. *Engineering a Robust Quantum Spin Hall State in Graphene via Adatom Deposition.* Physical Review X **1**, 021001 (2011).

[86] M. Ezawa. *Valley-Polarized Metals and Quantum Anomalous Hall Effect in Silicene.* Physical Review Letters **109**, 055502 (2012).

[87] C.-C. Liu, W. Feng, and Y. Yao. *Quantum Spin Hall Effect in Silicene and Two-Dimensional Germanium.* Physical Review Letters **107**, 076802 (2011).

[88] P. Ghaemi, S. Gopalakrishnan, and T. L. Hughes. *Designer quantum spin Hall phase transition in molecular graphene.* Physical Review B **86**, 201406 (2012).

[89] Y. Xu, B. Yan, H.-J. Zhang, J. Wang, G. Xu, P. Tang, W. Duan, and S.-C. Zhang. *Large-Gap Quantum Spin Hall Insulators in Tin Films.* Physical Review Letters **111**, 136804 (2013).

[90] A. Shitade, H. Katsura, J. Kuneš, X.-L. Qi, S.-C. Zhang, and N. Nagaosa. *Quantum Spin Hall Effect in a Transition Metal Oxide Na_2IrO_3.* Physical Review Letters **102**, 256403 (2009).

[91] M. Jenderka, J. Barzola-Quiquia, Z. Zhang, H. Frenzel, M. Grundmann, and M. Lorenz. *Mott variable-range hopping and weak antilocalization effect in heteroepitaxial Na_2IrO_3 thin films.* Physical Review B **88**, 045111 (2013).

[92] D. Xiao, W. Zhu, Y. Ran, N. Nagaosa, and S. Okamoto. *Interface engineering of quantum Hall effects in digital transition metal oxide heterostructures.* Nature Communications **2**, 596 (2011).

[93] S. Raghu, X.-L. Qi, C. Honerkamp, and S.-C. Zhang. *Topological Mott Insulators.* Physical Review Letters **100**, 156401 (2008).

[94] L. Wang, H. Jiang, X. Dai, and X. C. Xie. *Pole expansion of self-energy and interaction effect for topological insulators.* Physical Review B **85**, 235135 (2012).

[95] L. Wang, X. Dai, and X. C. Xie. *Interaction-induced topological phase transition in the Bernevig-Hughes-Zhang model.* Europhysics Letters **98**, 57001 (2012).

[96] N. A. García-Martínez, A. G. Grushin, T. Neupert, B. Valenzuela, and E. V. Castro. *Interaction driven phases in the honeycomb lattice from exact diagonalization.* Physical Review B **88**, 245123 (2013).

[97] M. Daghofer and M. Hohenadler. *Phases of correlated spinless fermions on the honeycomb lattice.* Physical Review B **89**, 035103 (2013).

[98] B. Roy and I. F. Herbut. *Topological insulators in strained graphene at weak interaction.* Physical Review B **88**, 045425 (2013).

[99] M. A. N. Araújo, E. V. Castro, and P. D. Sacramento. *Change of an insulator's topological properties by a Hubbard interaction.* Physical Review B **87**, 085109 (2013).

[100] D. N. Sheng, Z. Y. Weng, L. Sheng, and F. D. M. Haldane. *Quantum Spin-Hall Effect and Topologically Invariant Chern Numbers.* Physical Review Letters **97**, 036808 (2006).

[101] G. E. Volovik, *The Universe in a Helium Droplet* (Oxford University Press, 2003).

[102] S. Rachel and K. Le Hur. *Topological insulators and Mott physics from the Hubbard interaction.* Physical Review B **82**, 075106 (2010).

[103] M. Hohenadler, T. C. Lang, and F. F. Assaad. *Correlation Effects in Quantum Spin-Hall Insulators: A Quantum Monte Carlo Study.* Physical Review Letters **106**, 100403 (2011).

[104] D. Soriano and J. Fernández-Rossier. *Spontaneous persistent currents in a quantum spin Hall insulator.* Physical Review B **82**, 161302 (2010).

[105] W. Wu, S. Rachel, W.-M. Liu, and K. Le Hur. *Quantum spin Hall insulators with interactions and lattice anisotropy.* Physical Review B **85**, 205102 (2012).

[106] D. Zheng, G.-M. Zhang, and C. Wu. *Particle-hole symmetry and interaction effects in the Kane-Mele-Hubbard model.* Physical Review B **84**, 205121 (2011).

[107] Y. Yamaji and M. Imada. *Mott physics on helical edges of two-dimensional topological insulators.* Physical Review B **83**, 205122 (2011).

[108] S.-L. Yu, X. C. Xie, and J.-X. Li. *Mott Physics and Topological Phase Transition in Correlated Dirac Fermions.* Physical Review Letters **107**, 010401 (2011).

[109] D.-H. Lee. *Effects of Interaction on Quantum Spin Hall Insulators.* Physical Review Letters **107**, 166806 (2011).

[110] J. Wen, M. Kargarian, A. Vaezi, and G. A. Fiete. *Doping the Kane-Mele-Hubbard model: A slave-boson approach.* Physical Review B **84**, 235149 (2011).

[111] M. Mardani, M.-S. Vaezi, and A. Vaezi. *Slave-spin approach to the strongly correlated systems.* arXiv:1111.5980.

[112] M. Hohenadler, Z. Y. Meng, T. C. Lang, S. Wessel, A. Muramatsu, and F. F. Assaad. *Quantum phase transitions in the Kane-Mele-Hubbard model.* Physical Review B **85**, 115132 (2012).

[113] C. Griset and C. Xu. *Phase diagram of the Kane-Mele-Hubbard model.* Physical Review B **85**, 045123 (2012).

[114] A. Vaezi, M. Mashkoori, and M. Hosseini. *Phase diagram of the strongly correlated Kane-Mele-Hubbard model.* Physical Review B **85**, 195126 (2012).

[115] F. F. Assaad, M. Bercx, and M. Hohenadler. *Topological Invariant and Quantum Spin Models from Magnetic π Fluxes in Correlated Topological Insulators.* Physical Review X **3**, 011015 (2012).

[116] Y. Araki and T. Kimura. *Phase structure of two-dimensional topological insulators by lattice strong-coupling expansion.* Physical Review B **87**, 205440 (2013).

[117] H.-H. Hung, L. Wang, Z.-C. Gu, and G. A. Fiete. *Topological phase transition in a generalized Kane-Mele-Hubbard model: A combined quantum Monte Carlo and Green's function study.* Physical Review B **87**, 121113 (2013).

[118] S. Ueda, N. Kawakami, and M. Sigrist. *Proximity effects in a topological-insulator/Mott-insulator heterostructure.* Physical Review B **87**, 161108 (2013).

[119] M. H. Zare, F. Fazileh, and F. Shahbazi. *Zero-temperature phase diagram of the classical Kane-Mele-Heisenberg model.* Physical Review B **87**, 224416 (2013).

[120] Y. Araki, T. Kimura, A. Sekine, K. Nomura, and T. Z. Nakano. *Phase structure of topological insulators by lattice strong-coupling expansion.* arXiv:1311.3973.

[121] Z. Y. Meng, H.-H. Hung, and T. C. Lang. *The characterization of topological properties in Quantum Monte Carlo simulations of the Kane-Mele-Hubbard model.* arXiv:1310.6064.

[122] H.-H. Hung, V. Chua, L. Wang, and G. A. Fiete. *Finite-size and interaction effects on topological phase transitions via numerically exact quantum Monte Carlo calculations.* arXiv:1307.2659.

[123] S. Rachel and K. Le Hur. *Topological insulators and Mott physics from the Hubbard interaction.* Physical Review B **82**, 075106 (2010).

[124] K. S. Novoselov. *Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films.* Science **306**, 666 (2004).

[125] K. S. Novoselov. *Two-dimensional atomic crystals*. Proceedings of the National Academy of Sciences **102**, 10451 (2005).

[126] P. Wallace. *The Band Theory of Graphite*. Physical Review **71**, 622 (1947).

[127] Y. Hasegawa, R. Konno, H. Nakano, and M. Kohmoto. *Zero modes of tight-binding electrons on the honeycomb lattice*. Physical Review B **74**, 033413 (2006).

[128] S. R. Hassan and D. Sénéchal. *Absence of Spin Liquid in Nonfrustrated Correlated Systems*. Physical Review Letters **110**, 096402 (2013).

[129] F. D. M. Haldane. *Model for a Quantum Hall Effect without Landau Levels: Condensed-Matter Realization of the Parity Anomaly*. Physical Review Letters **61**, 2015 (1988).

[130] V. Gurarie. *Single-particle Green's functions and interacting topological insulators*. Physical Review B **83**, 085426 (2011).

[131] Z. Wang, X.-L. Qi, and S.-C. Zhang. *Topological Order Parameters for Interacting Topological Insulators*. Physical Review Letters **105**, 256803 (2010).

[132] Z. Wang, X.-L. Qi, and S.-C. Zhang. *Topological invariants for interacting topological insulators with inversion symmetry*. Physical Review B **85**, 165126 (2012).

[133] X.-L. Qi, T. L. Hughes, and S.-C. Zhang. *Topological field theory of time-reversal invariant insulators*. Physical Review B **78**, 195424 (2008).

[134] M. Buttiker. *Edge-State Physics Without Magnetic Fields*. Science **325**, 278 (2009).

[135] J. Reuther, R. Thomale, and S. Rachel. *Magnetic ordering phenomena of interacting quantum spin Hall models*. Physical Review B **86**, 155127 (2012).

[136] M. Kargarian, A. Langari, and G. A. Fiete. *Unusual magnetic phases in the strong interaction limit of two-dimensional topological band insulators in transition metal oxides*. Physical Review B **86**, 205124 (2012).

[137] T. Liu, B. Douçot, and K. L. Hur. *Anisotropic Quantum Spin Hall Effect, Spin-Orbital Textures and Mott Transition*. Physical Review B **88**, 245119 (2013).

[138] A. Rüegg and G. A. Fiete. *Topological Order and Semions in a Strongly Correlated Quantum Spin Hall Insulator*. Physical Review Letters **108**, 046401 (2012).

[139] T. L. Schmidt, S. Rachel, F. von Oppen, and L. I. Glazman. *Inelastic Electron Backscattering in a Generic Helical Edge Channel*. Physical Review Letters **108**, 156402 (2012).

[140] A. Kitaev. *Anyons in an exactly solved model and beyond*. Annals of Physics **321**, 2 (2006).

[141] I. Kimchi and A. Vishwanath. *Kitaev-Heisenberg models for iridates on the triangular, hyperkagome, kagome, fcc, and pyrochlore lattices*. Physical Review B **89,**, 014414 (2013).

[142] G. Khaliullin. *Orbital Order and Fluctuations in Mott Insulators*. Progress of Theoretical Physics Supplement **160**, 155 (2005).

[143] J. Chaloupka, G. Jackeli, and G. Khaliullin. *Kitaev-Heisenberg Model on a Honeycomb Lattice: Possible Exotic Phases in Iridium Oxides* A_2IrO_3. Physical Review Letters **105**, 027204 (2010).