

FIZIČKI FAKULTET
UNIVERZITETA U BEOGRADU

Master rad

**TERMODINAMIKA I TRANSPORT
ELEKTRONA U HUBBARD-OVOM
MODELU NA TROUGAONOJ REŠETKI**

student: Ana Vranić

mentor: Dr Darko Tanasković

Beograd, 2017.

Ovaj rad je izrađen u Laboratoriji za primenu računara u nauci (SCL) Instituta za fiziku u Beogradu, pod mentorstvom Darka Tanaskovića. Ovom prilikom mu se posebno zahvaljujem na pomoći oko izrade master rada, ukazanoj pažnji i strpljenju.

Takođe, se zahvaljujem Roku Žitku, Jerneju Mravlju, Juri Kokalju, Alenu Horvatu i Janu Skolimowski kao i Lari Ulčakar na gostoprivstvu tokom mog boravka u Ljubljani, zajedničkoj saradnji i korisnim diskusijama. Prvenstveno, Juri Kokalju na Lanczos rezultatima i Jaksi Vučićeviću na klaster DMFT rezultatima, koji su ovaj rad itekako upotpunili.

Zahvaljujem se Antunu Balažu, što mi je omogućio rad u SCL laboratoriji. Dušanu Vudragoviću, Petru Jovanoviću i Vladimиру Slavniću se zahvaljujem na tehničkoj pomoći i pozitivnoj kancelarijskoj atmosferi, ali i ostalim članovima SCL-a na prijatnom radnom okruženju.

Isto tako zahvalnost dugujem porodici i prijateljima koji su mi bili velika podrška tokom svi ovih godina.

Ana Vranić

Sadržaj

1 Uvod	1
2 Dinamička teorija srednjeg polja i Mott-ov metal-izolator prelaz	4
2.1 Hubbard-ov model	4
2.2 Dinamička teorija srednjeg polja	5
2.3 Mott-ov metal-izolator prelaz	7
2.4 Organski Mott-ovi izolatori	8
3 Metodi rešavanja DMFT jednačina	10
3.1 Iterativna perturbativna teorija	10
3.2 Kvantni Monte Carlo u kontinualnom vremenu	12
3.3 Klaster Dinamička teorija srednjeg polja	13
4 Rezultati na trougaonoj rešetki	16
4.1 Neinteragujuća gustina stanja i transportna funkcija trougaone rešetke . .	16
4.2 Energija	18
4.3 Specifična toplota i entropija	19
4.4 Kompresibilnost	20
4.4.1 Nelokalne korelacije na kvadratnoj rešetki	21
4.5 Transport elektrona	21
4.6 Poređenje IPT i CT-QMC rezultata za trougaonu rešetku	24
5 Zaključak	27
A Atomski limit Hubbard-ovog modela	29
B Sopstvena energija u drugom redu teorije perturbacije	31
C Računanje broja popunjenoosti n	33
D Računanje energije	35
E Kubo formula za optičku provodnost	36

Glava 1

Uvod

Jedna od popularnih oblasti fizike, teorija kondenzovanog stanja, između ostalog proučava i jako korelisane sisteme. Jaka interakcionala energija čestica, koja je uporediva ili dominantnija od kinetičke energije dovodi do neobičnih pojava, uključujući Mott-ov metal-izolator prelaz, različita feromagnetna ili antiferomagnetna uređenja, visokotemperaturnu superprovodnost i mnoge druge [1]. Na primer, kod vanadijum-oksida su primećene velike promene u otpornosti prilikom metal-izolator prelaza. Kuprati, čiji lokalizovani elektroni formiraju Mott-ov izolator, pri dopiranju postaju visokotemperaturni superprovodnici. Na niskim temperaturama provodni elektroni usled jake elektronske interakcije mogu se ponašati kao čestice hiljadu puta veće mase od mase slobodnih elektrona u metalima.

Konvencionalni metali kao što su bakar, aluminijum i drugi su uspešno opisani zonskom teorijom kristala. Valentni elektroni su aproksimirani slobodnim, neinteragujućim kvazičesticama, pri čemu su delokalizovani. U okviru zonske teorije osobine materijala se mogu odrediti samo na osnovu strukture zone i njene popunjenoosti. Ukoliko postoje dobro definisane popunjena i prazna zona, razdvojene energetskim procepcijom, onda je dati materijal izolator, dok za delimično popunjenu provodnu energetsку zonu se govori o metalu. Ono što omogućava uvođenje ovakve aproksimacije su izraženi efekti ekraniranja kao i Paulijev princip, što je objasnila Landauova teorija kvazičestica.

Međutim u prisustvu jake elektronske interakcije, zonska teorija nije primenljiva jer kretanje elektrona sada itekako zavisi od međusobnih korelacija u odnosu na elektrone u neposrednom okruženju. Većina jako koreliranih materijala ima atome sa delimično popunjениm d ili f atomskim orbitalama [2], a kuprati su jedan od istorijskih primera kod kojih zonska teorija nije mogla da odredi izolatorske osobine (kako je prisutna polupopunjena zona očekivali bi metal). Interakcija više nije nezanemarljiva, što iziskuje i kompleksniju teoriju.

Istraživanje u ovoj oblasti traje od 60-tih godina prošlog veka i na mnoga od fundamentalnih pitanja se može odgovoriti u okviru Hubbard-ovog modela [3] koji uzima u obzir kako kinetičku energiju (datu hopping parametrom t , *hopping* parametar, amplituda preskoka), tako i međusobnu interakciju elektrona (Hubbard-ovo U). Neinteragujuće stanje ($U=0$) je uvek metalno, dok u slučaju velike interakcije ($U/t \gg 1$), na polupopunjenoj rešetki sistem je uveliko u izolatorskoj fazi. Međutim, iako na prvi pogled jednostavan, Hubbardov

model je bio egzaktno rešiv samo u jednoj dimenziji. Danas, uz pomoć računara i razvoja numeričkih metoda ostvaren je veliki napredak u rešavanju Hubbard-ovog modela.

Značajan probaj je napravljen kada je pokazano da u limitu beskonačnih dimenzija (odnosno u limitu beskonačnog broja suseda) problem postaje egzaktno rešiv za proizvoljnu vrednost interakcije U i proizvoljnu temperaturu T . Tada se prostorne fluktuacije mogu zanemariti ali kvantne fluktuacije su u potpunosti uračunate. Ovo je dovelo do razvijanja Dinamičke teorije srednjeg polja (Dynamical mean field theory, DMFT), koja problem rešetke svodi na problem nečistoće u metalu, pri čemu je atom nečistoće uronjen u efektivni medium sa kojim može da razmenjuje elektrone [1]. 1992. Georges and Kotliar su primenili DMFT na Hubbard-ov model i značajno produbili naše poimanje metal-izolator prelaza.

Sa druge strane, postoje i numeričke metode koje daju rešenje direktno na rešetki. Zahtevna i kompleksna Lanczos metoda egzaktne dijagonalizacije na konačnoj temperaturi, uključuje prostorne fluktuacije ali se primenjuje na konačnodimenzionalni sistem sa maksimalno 16 čvorova rešetke. Proteklih godina se razvija i metod cluster DMFT, koji umesto jednog sajta nečistoće uvodi klaster (grupa od više sajtova), na taj način u određenoj meri uključuje nelokalne korelacije.

Primenom DMFT-a na konačno dimenzione sisteme čini se aproksimacija koja zanemaruje nelokalne korelacije, odnosno sopstvena energija se smatra nezavisnom od momenta $\Sigma(\vec{k}, \omega) \sim \Sigma(\omega)$. Postoje različite metode (takozvani impurity solver) koje problem nečistoće rešavaju sa više ili manje uspeha i sve oni imaju svoje mane i prednosti. U ovom radu su iskorišćena dva načina rešavanja DMFT jednačina: Iterativna perturbativna teorija (Iterated perturbation theory, IPT) i Kvantni Monte Carlo u kontinualnom vremenu (Continuous time quantum Monte Carlo, CT-QMC). Iako je IPT krajnje jednostavan i brz metod (vreme izvršavanja se meri minutima a upotreba superračunara nije neophodna), kvantne Monte Carlo metode su numerički egzaktne i rezultati se mogu dobiti sa proizvoljnom tačnošću odabirom broja Monte Carlo koraka. Metodi egzaktne dijagonalizacije zahtevaju veliku kompjutersku memoriju koja raste eksponencijalno sa brojem sajtova rešetke uračunatih u klaster, dok kod kvantnih Monte Carlo metoda skaliranje je linearno, što omogućava paralelizaciju programa a time i brze izvršavanje.

Cilj ovog rada je ispitati uticaj nelokalnih korelacija u Hubbard-ovom modelu na trougaonoj rešetki. Njihova jačina zavisi kako od temperature tako i od oblika rešetke. Poređenjem DMFT rezultata (termodynamičkih i transportnih osobina) na trougaonoj rešetki sa rezultatima dobijenim Lanczos metodom., videćemo kako na višim temperaturom nelokalne korelacije slabe i time rezultati počinju da se poklapaju. Kada dobijeni DMFT rezultat zamenimo cluster DMFT-om, što je prikazano na primeru kompresibilnosti, pokazuje se da cluster DMFT na dobar način uračunava nelokalne korelacije. Sa druge strane, ukoliko u istom opsegu temperatura, kao za trougaonu rešetku, predstavimo kompresibilnost kvadratne rešetke, izračunatu DMFT i Lanczos metodom, razlika između ova dva metoda će biti veća. U ovom slučaju nelokalne korelacije ne samo da su jače već opstaju i do viših temperatura.

Pored ovih rezultata u radu je prikazano i veoma detaljno poređenje dva metoda IPT i CT-QMC za rešavanje DMFT jednačina. Obe metode računaju Green-ove funkcije na imaginarnoj osi, odakle se mogu direktno odrediti termodinamičke osobine sistema. Pri slabijoj interakciji gotovo da ne postoji razlika u rezultatima, međutim za jačinu interakcije $U>W$, gde je W širina zone, na nižim temperaturama IPT metod može imati artefakte. Bez obzira na to, u visokotemperaturnom režimu IPT daje numerički egzaktne rezultate. Da bi se izračunale transportne osobine, potrebne su Green-ove funkcije na realnoj osi. Tada se mogu pojaviti odstupanja koje potiču od samih metoda za analitičko produženje. Videćemo da postoji dobro slaganje transportnih osobina dobijenih pomoću DMFT-a, u okviru greške metoda. Tako da, kombinacija IPT i CT-QMC rešenja dovodi do efikasnog pristupa u rešavanju DMFT jednačina.

Glava 2

Dinamička teorija srednjeg polja i Mott-ov metal-izolator prelaz

U ovom poglavlju biće uvedena dinamička teorija srednjeg polja i objašnjeno na koji način se Hubbard-ov model, koji opisuje rešetku, svodi na Andersonov modelom, koji opisuje nečistoču u metalu, a koji je dopunjen relacijom samousaglašenosti. Videćemo primenu dinamičke teorije srednjeg polja u opisu metal izolator prelaza, kao i jedan primer realnog, jako korelisanog materijala sa trougaonom kristalnom rešetkom čije osobine želimo da ispitamo.

2.1 Hubbard-ov model

Najjednostavniji model za jako korelisane elektrone je Hubbard-ov model. Pored kinetičkog člana koji opisuje kretanje elektrona uvodi se i interakcija među elektronima kada se nađu na istom čvoru rešetke. Hamiltonian ima sledeći oblik:

$$H = - \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} d_{i\sigma}^+ d_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (2.1.1)$$

,gde su d^+ i d , operatori kreacije i anihilacije čestice; t_{ij} je hoping parametar, koji određuje kantičku energiju. $n_{i\sigma} = d_{i\sigma}^+ d_{i\sigma}$ je operator broja popunjenoštvi elektrona spina σ na čvoru i . U ovom modelu elektroni spinske orijentacije \uparrow ili \downarrow , mogu da se kreću po čvorovima rešetke [1]. Ukoliko se nađu na istom čvoru, suprotno su orijentisani (na osnovu Paulijevog principa) i tada interaguju interakcionom energijom U , što i opisuje drugi član hamiltonijana.

Osnovna veličina koju računamo je Green-ova funkcija, koja odgovara verovatnoći da se kreira jedan elektron spina σ na i-tom sajtu u trenutku τ' i anihilira na istom sajtu u kasnijem trenutku τ , je po definiciji:

$$G_{i\sigma}(\tau - \tau') = -\langle T_\tau d_{i\sigma}(\tau) d_{i\sigma}^\dagger(\tau') \rangle, \quad (2.1.2)$$

gde je T_τ operator vremenskog uređenja. Na osnovu Dyson-ove jednačine, jednočestična Green-ova funkcija može zapisati kao:

$$G_k(i\omega_n) = \frac{1}{i\omega_n + \mu - \epsilon_k - \Sigma(k, i\omega_n)}, \quad (2.1.3)$$

gde se ϵ_k dobija iz disperzije relacije $\epsilon_k = \sum_{ij} e^{ik(R_i - R_j)} t_{ij}$. Pored neinteragujućeg limita kada je $U=0$, $G_k(i\omega_n) = \frac{1}{i\omega_n + \mu - \epsilon_k}$, $\Sigma(\vec{k}, i\omega) = 0$, Green-ovu funkciju možemo zapisati i u atomskom limitu $U/t \gg 1$: (njihovo izvođenje je dato u Dodatku A)

$$\begin{aligned} G_{atom}(i\omega_n) &= \frac{1-n}{i\omega_n + \mu} + \frac{n}{i\omega_n + \mu - U} \\ \Sigma_{atom}(i\omega) &= Un + U^2 \frac{n(1-n)}{i\omega + \mu - (1-n)U} \end{aligned} \quad (2.1.4)$$

Kada je broj elektrona isti kao broj čvorova (polupotpunjena rešetka: $n = 0.5$, odnosno doping je $p = 2n - 1 = 0$), pri interakcionaloj energiji znatno većoj od kinetičke, favorizovano je stanje u kome se na svakom čvoru rešetke nalazi po jedan elektron, što dovodi do pojave izolatora. Neinteragujuće stanje je u metalnoj fazi. Između ova dva granična slučaja, mora postojati i neka kritična vrednost interakcije za koju dolazi do promene osnovnog stanja sistema. U jednoj dimenziji, Hubbard-ov model je egzaktно rešiv, i osnovno stanje je izolator za $U > 0$, ali u višim dimenzijama očekuje se konačna vrednost kritične interakcije.

2.2 Dinamička teorija srednjeg polja

Dinamička teorija srednjeg polja (DMFT) daje mnoge odgovore o dinamici jako koreliranih sistema i uspešno opisuje Mott-Hubbard-ov metal-izolator prelaz. Zasniva se na mapiranju Hubbard-ovog modela na model Andersonove nečistoće, uz jednačinu samousaglašenosti koja povezuje lokalnu Green-ovu funkciju rešetke sa Green-ovom funkcijom nečistoće. To se bolje vidi iz formalizma funkcionalnih integrala [4]. Za Hubbard-ov model važi da je particiona funkcija $Z = \int D[\bar{d}d]e^{-S_{hub}}$, gde je dejstvo dato kao:

$$S_{hub} = \int_0^\beta d\tau \left\{ \sum_{i,j\sigma} \bar{d}_{i\sigma} ((\partial_\tau - \mu) \delta_{ij} + t_{ij}) d_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \right\} \quad (2.2.1)$$

Ukoliko se sa rešetke izdvoji jedan sajt, može se definisati efektivno dejstvo datog sajta u odnosu na ostatak rešetke. U limitu beskonačnih dimenzija se ispostavlja da efektivno dejstvo izdvjenog sajta odgovara dejstvu nečistoće S_{imp} . U modelu Andersonove nečistoće:

$$S_{imp} = \int_0^\beta \int d\tau d\tau' \bar{d}_{i\sigma} (-\mathcal{G}^{-1}(\tau - \tau')) d_{j\sigma} + \int_0^\beta d\tau U n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (2.2.2)$$

gde je Weiss-ovo srednje polje \mathcal{G} , Dajson-ovom jednačinom povezano sa Green-ovom funkcijom i sopstvenom energijom nečistoće: $G_{imp}^{-1}(i\omega_n) = \mathcal{G}^{-1} - \Sigma(i\omega_n)$.

Pre daljeg opisa Dinamičke teorije srednjeg polja, biće ukratko objašnjen Anderson-ov model nečistoća.

Andersonov model

Hamiltonian ovog modela opisuje magnetne nečistoće u metalu [2]:

$$\begin{aligned} H_{and} &= H_{atom} + H_{bath} + H_{coupling} \\ H_{atom} &= Un_\uparrow n_\downarrow + (\epsilon - \mu)(n_\uparrow + n_\downarrow) \\ H_{bath} &= \sum_{i,\sigma} \epsilon_i a_{i\sigma}^\dagger a_{i\sigma} \\ H_{coupling} &= \sum_{i,\sigma} V_i (a_{i\sigma}^\dagger d_\sigma + d_\sigma^\dagger a_{i\sigma}) \end{aligned} \quad (2.2.3)$$

Operator a^+ kreira provodni elektron momenta k , spina σ i energije ϵ_k , dok d^+ , kreira elektron nečistoće. V je hibridizacija vezanog d elektrona i provodnih elektrona. Kada posmatramo magnetni jon uronjen u elektronski kontinuum, d elektroni mogu da tuneluju, tj. da se hibridizuju sa okolinom.

Energetski zavisna hibridizaciona funkcija sadrži sve informacije o hibridizaciji [4]:

$$\Delta(i\omega_n) = \sum_k \frac{V_k^2}{i\omega_n - \epsilon_k} \quad (2.2.4)$$

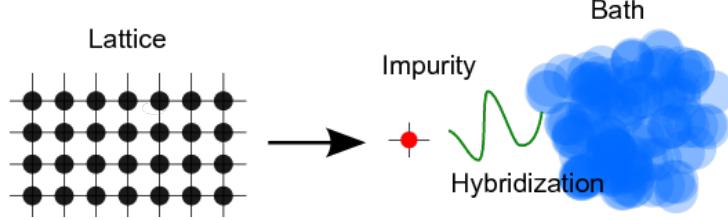
dok je Green-ova funkcija nečistoće data sa:

$$G_{imp}(i\omega_n) = \frac{1}{i\omega_n + \mu - \Delta(i\omega_n) - \Sigma(i\omega_n)}, \quad (2.2.5)$$

gde je $\Sigma(i\omega_n)$, sopstvena energija koju treba da izračunamo.

DMFT jednačine

Dinamička teorija srednjeg polja (DMFT), jedan višečestični problem-rešetku, aproksimira atomom (nečistoća) uronjenim u medijum provodnih elektrona. (slika 2.1)



Slika 2.1: Problem rešetke se mapira na jedan sajt nečistoće uronjen u polje provodnih elektrona, koji su međusobno kuplovani hibridizacionom funkcijom.

U limitu beskonačnih dimenzija, sopstvena energija $\Sigma(\vec{k}, i\omega_n)$ u jednačini (2.1.3) ne zavisi od impulsa \vec{k} [5], $\Sigma_{\vec{k}, i\omega_n}(i\omega_n) \equiv \Sigma_{loc}(i\omega_n)$, tako da je lokalna Green-ova funkcija rešetke:

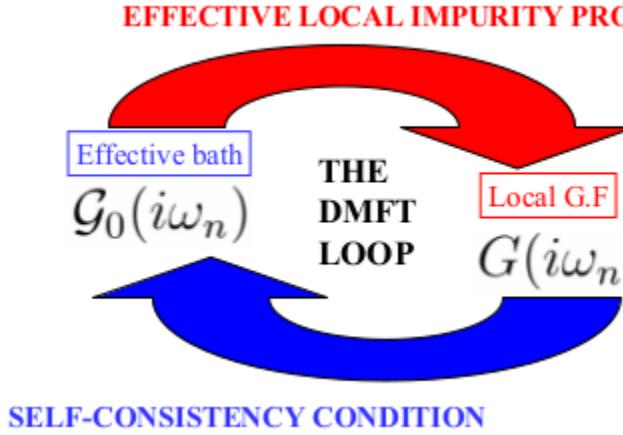
$$\begin{aligned} G_{loc}(i\omega_n) &= \sum_k G_k(i\omega_n) = \sum_k \frac{1}{i\omega_n + \mu - \epsilon_k - \Sigma(i\omega_n)} \\ &= \int d\epsilon \frac{\rho(\epsilon)}{i\omega_n + \mu - \epsilon - \Sigma(i\omega_n)}, \end{aligned} \quad (2.2.6)$$

gde je $\rho(\epsilon) = \sum_k \delta(\epsilon - \epsilon_k)$ gustina stanja, a sa sumacije po k prostoru rešetke je predeno na integral po energiji. Takođe, Green-ova funkcija nečistoće je jednaka lokalnoj Green-ovoj funkciji rešetke $G_{imp} = G_{loc}$. Kako važi i Dojsonova jednačina $G_{imp}^{-1}(i\omega_n) = G_0^{-1} - \Sigma(i\omega_n)$ i znajući da je $G_0^{-1} = i\omega_n + \mu - \Delta(i\omega_n)$, dobija se relacija samo-usaglašenosti:

$$\Delta(i\omega_n) = i\omega_n + \mu - \Sigma(i\omega_n) - G_{loc}^{-1}. \quad (2.2.7)$$

Time su date sve jednačine potrebne za iterativnu DMFT petlju(slika 2.2)[6]. Polazna tačka je Weiss-ova funkcija $G_0(i\omega_n)$. Potom se nekom od metoda dobija $\Sigma(i\omega_n)$ i na kraju se samo-usaglašeno izračunava hibridizaciona funkcija $\Delta(i\omega_n)$, koja definiše novu funkciju $G_0(i\omega_n)$. Petlja se ponavlja sve dok rešenje ne iskonvergira, odnosno Green-ove funkcije u dve poslednje iteracije ne postanu jednake.

Dinamika jednog sistema sa nečistoćama uopšte nije trivijalna i upravo dobijanje sopstvene energije nečistoće je najzahtevniji deo. Da bi se ovaj problem rešio razvijene su



Slika 2.2: Iterativna petlja kojom se dolazi do rešenja DMFT jednačina

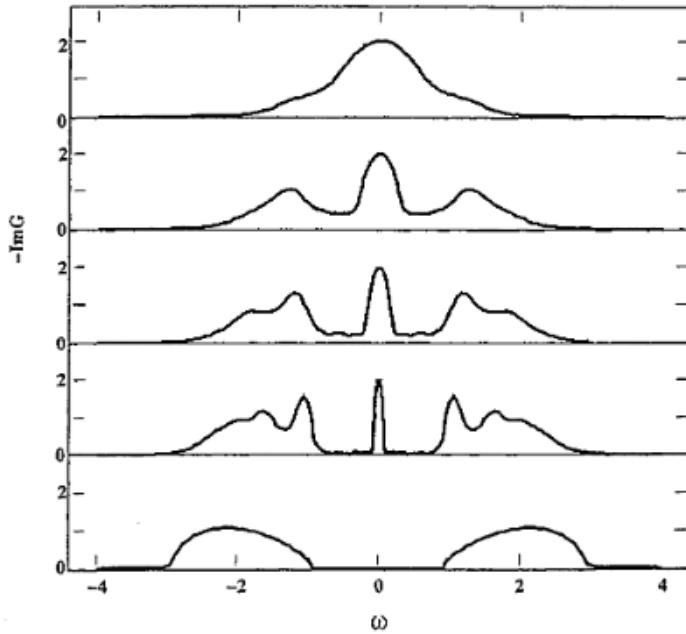
razne numeričke metode ali i dan danas se radi na njihovom poboljšanju. U ovom radu biće stavljen akcenat na aproksimativnu Iterativnu Perturbativnu teoriju i na numerički egzaktan Kvantni Monte Carlo metod u kontinualnom vremenu.

2.3 Mott-ov metal-izolator prelaz

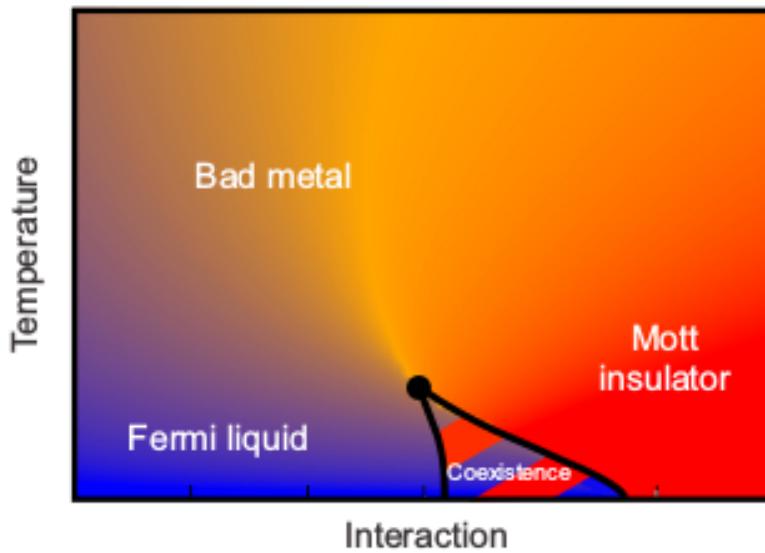
Usled jakih korelacija između fermiona na polupopunjenoj rešetki sistem može doživeti fazni prelaz između metala u izolator, koji je poznat pod nazivom Mott-ov ili Mott-Hubbard-ov metal-izolator prelaz ipredstavlja jednu od najinteresantnijih pojava fizike kondenzovane materije. Za veliku vrednost interakcije U , dvostruko okupirani čvorovi rešetke energetski više koštaju sistem. Sistem će tada redukovati svoju energiju lokalizovanjem jednog elektrona po čvoru rešetke, čime se ispoljavaju osobine izolatora. Primena DMFT teorije na Hubbard-ov model polupopunjene rešetke je dobijeno dosta korisnih rezultata.

Osnovna veličina u DMFT teoriji je lokalna jednočestična Green-ova funkcija [6][5]. Njen imaginarni deo $\rho(\omega) = -Im(G(\omega))/\pi$ je gustina stanja interagujućeg sistema, odnosno spektralna funkcija. Na slici 2.3 je prikazano kako se spektralna funkcija menja povećanjem interakcije. Dva ekstremna slučaja su u potpunosti jasna. Kada su elektroni neinteragujući spektralna funkcija predstavlja lokalnu neinteragujuću gustinu stanja. Sa druge strane, izolator se odlikuje sa dva šira pika, čiji su centri razdvojena energijom U : niži (lower Hubbard band- LHB) i viši (upper Hubbard band- UHB). Ispod kritične vrednosti interakcije U , pored Hubbard-ovih band-ova u spektalnoj funkciji se javlja i kvazičestični pik, koji postepeno nestaje kako se sistem približava kritičnim parametrima metal-izolator prelaza. Ispostavlja se da karakteristična struktura od tri pika, pored Anderson-ovog modela nečistoća opisuje i jako-korelisane sisteme.

Na slici 2.4 je prikazan fazni dijagram dobijen iz DMFT rešenja [7]. Mott-ov izolator se dobija za veliku interakciju U , dok je pri slaboj interakciji prisutna metalna faza. U oblasti koegzistencije može postojati i izolatorsko i metalno rešenje. Ako povećavamo temperaturu dobija se stanje sistema gde više nemamo ni dobar metal ali ni dobar izolator.



Slika 2.3: Evolucija spektralne funkcije prilikom metal-izolator prelaza. U metalnoj fazi su prisutna tri pika (kvazičestični pik i dva Hubbardova band-a), dok povećanjem interakcije spektralna težina kvazičestičnog pika se postepeno prebacuje na Hubbard-ove band-ove.



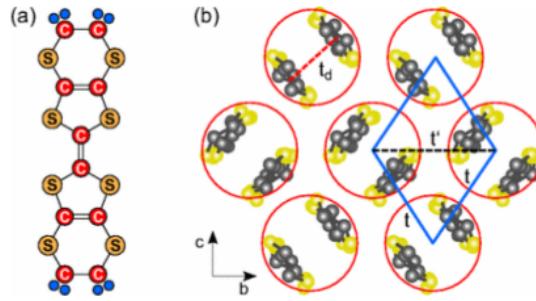
Slika 2.4: Fazni dijagram

2.4 Organski Mott-ovi izolatori

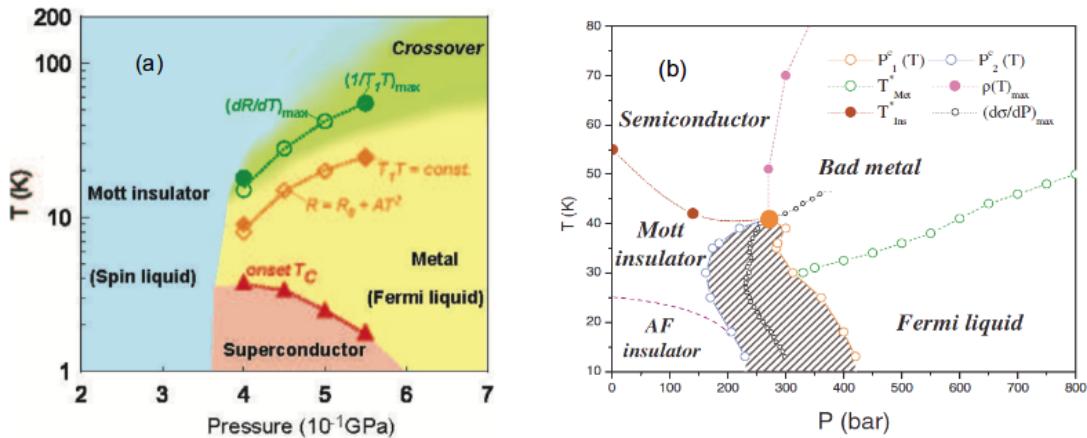
Organski Mott-ovi izolatori [8] kao što su $(BEDT-TTF)_2X$, gde je X npr. $Cu_2(CN)_3$ ili $CuN(CN)_2Cl$, spadaju u klasu κ -organica a njihove osobine su opisane Hubbardovim modelom na polupopunjenoj anizotropnoj trougaonoj rešetki. Svakom čvoru rešetke odgovara par molekula povezanih u dimer.

Na nižim temperaturama, članovi κ -organica mogu ispoljavati različito magnetno uređenje, što je upravo posledica magnetne frustracije rešetke. Ukoliko se dva spina orijentisu antiferomagnetno, onda na trećem čvoru rešetke ne možemo sa sigurnošću znati orijentaciju spina. Tako da postoje jedinjenja koja uopšte nisu magnetno uređena, dok druga tek u izolatorskoj fazi imaju antiferomagnetno uređenje. To se jasno vidi slici 2.6, koja prikazuje

fazni dijagram.



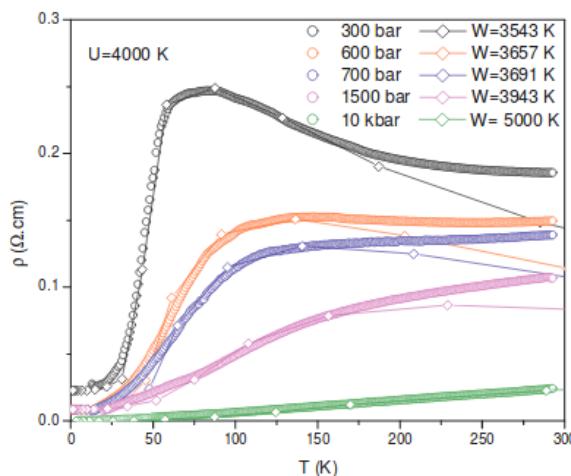
Slika 2.5: Molekuli organika, koji u osnovi imaju trougaonu rešetku



Slika 2.6: Fazni dijagram različitih organskih molekula

U realnim sistemima metal-izolator prelaz se može izazvati promenom pritiska, ili dopiranjem. Kada pritisak raste, odnos U/T opada, tako da u donjem desnom delu dijagrama (slika 2.6) sistem se nalazi u metalnoj fazi, dok je u donjem levom uglu dijagrama prisutan izolator.

Na višim temperaturama, bez obzira na uređenje, sistemi počinju da ispoljavaju slične osobine, ali ne samo unutar klase κ -organika već je uočeno da različiti Mott-ovi sistemi dobijaju na univerzalnosti. Tipičan oblik krive otpornosti u funkciji temperature je prikazan na slici 2.7. Vidimo da otpornost zavisi od temperature i od pritiska dok u blizini metal-izolator prelaza (crna linija), menja monotonost.



Slika 2.7: Transport elektrona organskih molekula

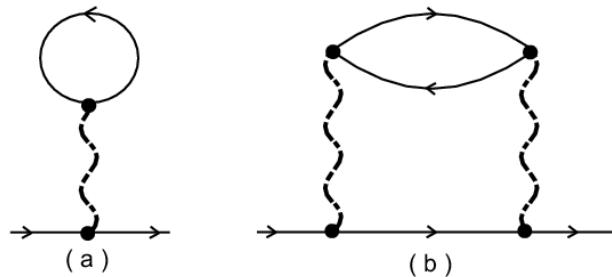
Glava 3

Metodi rešavanja DMFT jednačina

Postoji više metoda za rešavanje DMFT jednačina. U narednim poglavljima su opisane korišćene metode u ovom radu: Iterativna perturbaciona teorija i Kvantni Monte Carlo u kontinualnom vremenu. Takođe, uvešćemo i uopštenje DMFT teorije, klaster Dinamičku teoriju srednjeg polja.

3.1 Iterativna perturbativna teorija

Iterativna perturbaciona teorija (IPT) je jedan od najjednostavnijih i najbržih metoda za rešavanje DMFT jednačina. Sopstvena energija $\Sigma(i\omega_n)$ se aproksimira drugim redom teorije perturbacije kao $\Sigma(i\omega_n) = Un + \Sigma_0^{(2)}(i\omega_n)$. Prvi red aproksimacije je reda interakcije U je ujedno Hartree član.



Slika 3.1: Feynmanovi dijagrami za (a) prvi, (b) drugi red teorije perturbacije sopstvene energije

U simetričnom slučaju, kada je rešetka polupopunjena ($n = 0.5$) sopstvena energija ima sledeći oblik $\Sigma(i\omega_n) = nU + \int d\tau G_0(\tau)^3 e^{i\omega_n \tau}$ i u početku, IPT jednačine su bile rešene za polupopunjenu rešetku. [5]

Vrednost hemijskog potencijala je fiksirana $\mu = U/2$ (dodatak A) i zamenom u Greenovu funkciju nečistoće poništava se sa prvim članom sopstvene energije, odnosno dobija se $G_{imp} = \frac{1}{i\omega_n - \Delta - \Sigma^{(2)}}$. Time, sopstvena energija je egzaktna u atomskom limitu ali i u slabo kuplovanom limitu ($U \rightarrow 0$). Za proizvoljnu popunjenošću ovakva sopstvena energija bi davala nefizička rešenja i potrebno je uvesti nešto drugačiju aproksimaciju.[9] [10]

Sopstvena energija se modifkuje ansatz-om koji je parametrizovan konstantama A i B.

$$\Sigma(i\omega_n) = Un + \frac{A\Sigma_0^{(2)}(i\omega_n)}{1 - B\Sigma_0^{(2)}(i\omega_n)}, \quad (3.1.1)$$

gde je drugi red perturbativnog razvoja sopstvene energije:

$$\Sigma_0^{(2)}(i\omega_n) = \int_0^\beta d\tau e^{i\omega_n\tau} \Sigma_0^{(2)}(\tau), \quad (3.1.2)$$

$$\Sigma_0^{(2)}(\tau) = U^2 G_0(\tau) G_0(-\tau) G_0(\tau). \quad (3.1.3)$$

Neinteragujuću Green-ova funkciju definišemo kao

$$G_0(i\omega_n) = \frac{1}{i\omega_n + \mu_0 - \Delta(i\omega_n)}, \quad (3.1.4)$$

gde se uvodi pomoćni, fiktivni, potencijal μ_0 , dok je $\Delta(i\omega_n)$ je hibridizaciona funkcija. Fiktivna popunjeno stanja $n_0 = G_0(\tau = 0^-)$ se dobija iz neinteragujuće funkcije G_0 , dok je $n = G(\tau = 0^-)$ elektronska popunjeno na rešetki i računa se iz G . Hemijski potencijali μ i μ_0 odgovaraju popunjenoima stanja n i n_0 .

Jedna mogućnost je da fiksiramo vrednost $n = n_0$ [11]. Tada preostaje da se reše dve nelinearne jednačine sa nepoznatima μ odnosno μ_0 :

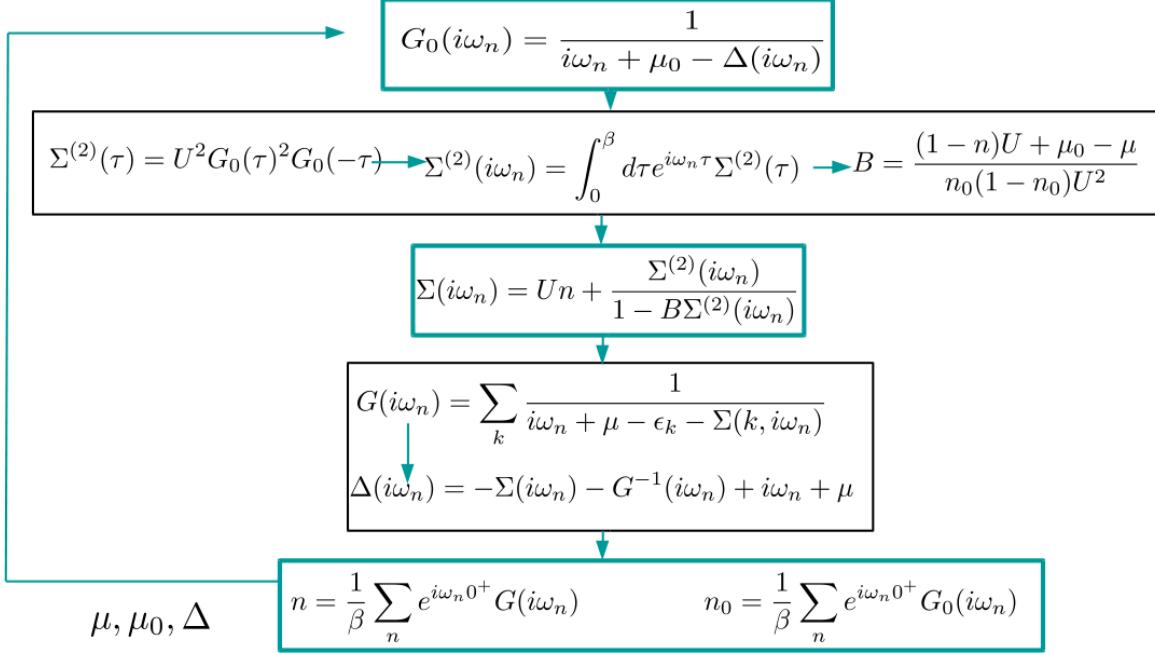
$$\begin{aligned} n &= \frac{1}{\beta} \sum_n e^{i\omega_n 0^+} G(i\omega_n) = \frac{1}{\beta} \sum_n e^{i\omega_n 0^+} \frac{1}{i\omega_n + \mu - \Delta(i\omega_n) - \Sigma(i\omega_n)} \\ n_0 &= \frac{1}{\beta} \sum_n e^{i\omega_n 0^+} G_0(i\omega_n) = \frac{1}{\beta} \sum_n e^{i\omega_n 0^+} \frac{1}{i\omega_n + \mu_0 - \Delta(i\omega_n)} \end{aligned} \quad (3.1.5)$$

Još je potrebno odrediti konstante A i B. Kako želimo egzaktnost rešenja u različitim limitima, konstanta A će definisati visoko visoko frekfentni limit $\omega \rightarrow \infty$ a konstanta B atomski limit Hubbard-ovog modela $U/t \gg 1$. Izvođenje konstanti je dato u dodatku B, a ovde je izdvojen konačan rezultat:

$$A = \frac{n(1-n)}{n_0(1-n_0)}, \quad B = \frac{(1-n)U + \mu_0 - \mu}{n_0(1-n_0)U^2} \quad (3.1.6)$$

Iterativna IPT petlja je prikazana na slici (3.2), koja se ponavlja sve dok rešenje ne iskonvergira. Na samom početku treba prepostaviti hibridizacionu funkciju, hemijski potencijal i fiksirati n. Tada se može izračunati G_0 i rešiti IPT jednačine, čime dobijamo sopstvenu energiju sistema. Koristeći jednačinu samo-usaglašenosti nalazi se Green-ovu funkciju rešetke a potom i nove hemijske potencijale μ , μ_0 kao i hibridizacionu funkciju, $\Delta(i\omega_n)$.

IPT metod je implementiran u programskom jeziku Python pri čemu je korišćen javno dotupan paket TRIQS (Toolbox for Research on Interacting Quantum Systems) [12].



Slika 3.2: Shema petlje koja rešava IPT $n=n0$ solver i jednačinu self-konzistencije. Petlja započinje računanjem neinteragujuće Green-ove funkcije na osnovu pretpostavljenih parametara. Već u narednoj iteraciji koriste se izračunati parametri. Proces se ponavlja dok rešenje ne iskonvergira.

3.2 Kvantni Monte Carlo u kontinualnom vremenu

Pored aproksimativne metode kao što je IPT, moguće je primeniti i kvantne Monte Carlo metode. Pre desetak godina je razvijen kvantni Monte Carlo metod u kontinualnom vremenu (Continuous Time Quantum Monte Carlo - CTQMC), koji na veoma pouzdan način može da odredi dinamiku jako-korelisanog sistema. Osnovna ideja je Feynman-ov razvoj particione funkcije Andersonovog modela. Kod jako-korelisanih sistema particiona funkcija se razvija po stepenima hibridizacione funkcije (CT-HYB algoritam). Prednost ovog metoda je primenjivost i na višeorbitalne modela. U radu je iskorišćen javno dostupan CT-QMC program, koji se nalazi u okviru TRIQS paketa [12].

U ovom poglavlju ćemo opisati osnove CT-HYB algoritma i primene Monte Carlo metode na računanje particione funkcije [13]. Ovde je korisno preći u interakcionu reprezentaciju i particionu funkciju Anderson-ovog modela nečistoće ima sledeći oblik:

$$Z = \overbrace{\text{Tr}_a \text{Tr}_d [e^{-\beta(H_{loc} + H_{bath})}] \text{Tr}_\tau e^{-\int_0^\beta d\tau H_{hyb}}}^{w_c}. \quad (3.2.1)$$

Nakon razvijanja particione funkcije dobija se izraz na koji se može primeniti MC metod.

$$Z = \underbrace{\sum_n \int \dots \int}_{\Sigma_c} \underbrace{d\tau_1 \dots d\tau_n \tau_n \text{Tr}_a \text{Tr}_d [e^{-\beta(H_{loc} + H_{bath})}] \text{Tr}_\tau (-H_{hyb}(\tau_n)) \dots (-H_{hyb}(\tau_1))}_{w_c} \quad (3.2.2)$$

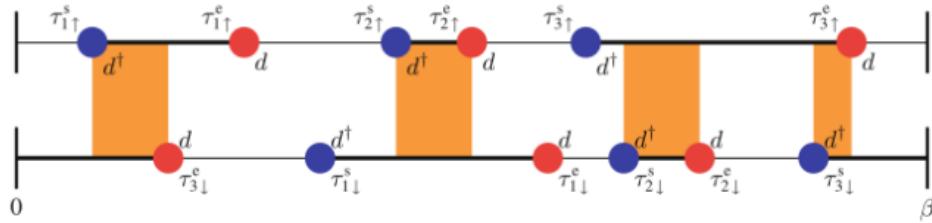
Σ_c je skup tačaka na imaginarnoj vremenskoj osi na intervalu od $[0, \beta]$ dok w_c prepoznajemo kao težinu konfiguracije c datu kao proizvod vremenskih intervala $d\tau$ i hibridizacionih operatora.

Zamenom Hamiltonijana i integracijom po elektronskom kontinuumu dobija se eksplicitniji oblik jednačine:

$$Z = Z_{bath} \sum_n \frac{1}{n!} \int d\tau_1 d\tau'_1 \dots d\tau_n d\tau'_{n'} \sum_{\sigma_1 \dots \sigma_n} \sum_d [T_\tau e^{-\beta H_{loc}} d_{\sigma_1}(\tau_1) d_{\sigma'_1}^\dagger(\tau'_1) \dots d_{\sigma_n}(\tau_n) d_{\sigma'_{n'}}^\dagger(\tau'_{n'})] \det \Delta \quad (3.2.3)$$

gde je Δ matrica sa elementima hibridizacione funkcije $\Delta_{ij} = \Delta(\tau(i) - \tau(j))$.

Dakle, da sumiramo, particona funkcija je data kao $Z = \sum_c w_c$, dok srednju vrednost neke funkcije na prostoru c dobijamo kao $\langle f(c) \rangle = \frac{1}{Z} \sum_c w_c f_c$. Vremenska evolucija nečistoće se može predstaviti kao skup segmenata u vremenskom intervalu $d\tau$. Kako elektron koji okupira nečistoću u metalu, može imati spin \uparrow ili \downarrow , konfiguracioni prostor za jednoorbitalni sistem je dat kao na slici. Gornja linija predstavlja spin \uparrow , a donja spin \downarrow . Deblje linije prikazuju segmente kada elektron okupira nečistoću, a osenčeni delovi dijagrama kažu da je orbitala dvostruko okupirana.



Slika 3.3: Konfiguracioni prostor elektrona na nečistoći

U algoritmu se polazi od početne konfiguracije x sa x_n segmenata -skup fermionskih operatora u različitom vremenu, a potom se ubacuje novi segment x_{n+1} da bi se dobila nova konfiguracija y . Verovatnoća prelaza iz jedne konfiguracije u drugu je data sa $P(x_{n+1}|x_n)$, odnosno gustina verovatnoće nove konfiguracije je:

$$p_{n+1}(x_{n+1}) = \sum_{x_n} P(x_{n+1}|x_n) p_n(x_n). \quad (3.2.4)$$

Kako vazi $P(y|x)p(x) = P(x|y)p(y)$ i takođe verovatnoća prelaza zavisi da li će nova konfiguracija biti prihvaćena ili ne $P = P_{acc}P_{prop}$ (ne prihvata se ukoliko se novi segment nađe unutar segmenta koji je okupiran elekronom) a verovatnoća da konfiguracija R bude ostvarena je:

$$\frac{P_{acc}(x|y)}{P_{acc}(y|x)} = \frac{P_{prop}(y|x)p(x)}{P_{prop}(x|y)p(y)} = R(x|y) \quad (3.2.5)$$

Na ovaj način se za svaku konfiguraciju određuje odgovarajuća MC težina, evaluacijom Tr fermi operatora i računanjem determinante matrice Δ , a potom se određuje i Green-ova funkcija direktno u imaginarnom vremenu.

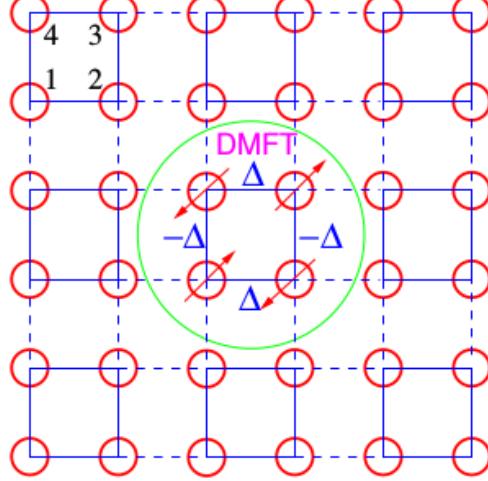
3.3 Klaster Dinamička teorija srednjeg polja

Dinamička teorija srednjeg polja, sopstvenu energiju smatra lokalnom i konstantnom. Svakakvo, takva aproksimacija nije u potpunosti tačna. Iako se pokazalo da u mnogim slučajevima daje prihvatljive rezultate, da bi se dobila slika bliža realnim sistemima

potrebno na neki način uvesti zavisnost sopstvene energije od impulsa. Jedan pristup je da se rešetka podeli na klastere (slika 3.4) koji se sastoje od N_c sajtova rešetke. [14] [13] Unutar klastera uključuju se kratkodometne korelacije, a sopstvena energija se može definisati sa N_c bazisnih koeficijenata $\phi_\lambda(\vec{k})$, zavisnih od impulsa:

$$\Sigma_{ap}(\vec{k}, i\omega_n) = \sum_{j=1}^{N_c} \phi_j(\vec{k}) \Sigma_j(i\omega_n) \quad (3.3.1)$$

Odavde se vidi da za izbor $N_c = 1$ važi da je $\phi_\lambda(\vec{k}) = const$, odnosno jednačinom (3.3.1) se definiše uopštenje DMFT teorije.



Slika 3.4: Podela rešetke na klastere

Dejstvo rešetke se može podeliti na dva člana:

$$S = \sum_m S^{(m)} + \sum_{m,n} S^{(m,n)} \quad (3.3.2)$$

gde se prvi odnosi na dejstvo klastera, a drugi na dejstvo sajtova unutar klastera. Dejstvo ostatka rešetke na jedan klastar se može zapisati kao:

$$S_{eff} = \int d\tau \sum_{i,j} c_i^*(\tau) \mathbf{G}_{0ij}^{-1}(\tau) c_j(0) + \int d\tau \sum_i U n_{i\uparrow}(\tau) n_{i\downarrow}(\tau) \quad (3.3.3)$$

Sada je Weiss-ovo polje matrica koja opisuje sve moguće korelacije između sajtova u klastaru. Slično kao u DMFT-u problem rešetka se mapira na modelu nečistoće, i stoga dobijaju se slične jednačine kao u DMFT pristupu. Ukupnu Green-ovu funkciju rešetke $\mathbf{G}_{loc} = \sum_K \mathbf{G}(\vec{K}, i\omega)$ smatramo jednakom sa Green-ovom funkcijom nečistoće, $\mathbf{G}_{loc} = \mathbf{G}$. Ovde je klastar Green-ova funkcija rešetke $\mathbf{G}(\vec{K}, i\omega)$ definisana matričnom jednačinom:

$$\mathbf{G}(\vec{K}, i\omega) = \frac{1}{(i\omega + \mu) \mathbf{I} + \mathbf{t}_K - \Sigma}, \quad (3.3.4)$$

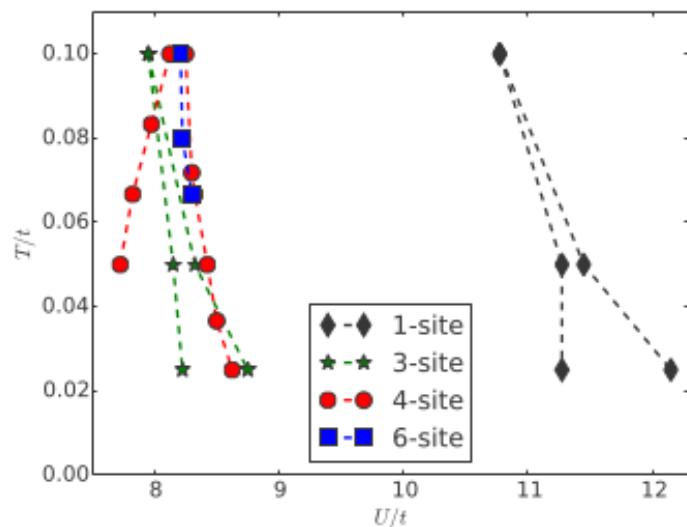
gde je \mathbf{t}_K matrica hoppinga unutar klastera, dok je sopstvena energija lokalna na nivou klastera i ne zavisi od vektora K, redukovane Brilionove zone. Odnosno, dobija se koegzistentna jednačina cluster DMFT modela:

$$\mathbf{G}_{loc}^{-1} = \mathbf{G}_0^{-1} - \Sigma. \quad (3.3.5)$$

Iako se ovakva aproksimacija suočava sa problemom narušenja simetrije kristala, jer su na rešetki uračunate korelacije samo unutar klastera ali ne i među njima, ovaj metod daje realniji opis sistema u odnosu na DMFT.

Fazni dijagram

Osnovnu razliku izmedju DMFT i cluster DMFT metoda možemo videti na faznom dijagramu Mott-ovog metal izolator prelaza, ovde konkretno na trougaonoj rešetki (slika 3.5)[15]. Klaster od jednog sajta odgovara DMFT-u,dok su linije faznog dijagrama veće dimenzije klastera dobijene cluster DMFT-om. Linije razdvajaju metalnu fazu(levo) od izolatorske (desno). Prostor između njih je oblast koegzistencije gde je moguće dobiti oba rešenja u zavisnosti od početne konfiguracije sistema. Sa slike vidimo da do kritične temperature $T_c/t \approx 0.1$, postoje razlike u obliku faznih linija ali i u numeričkim vrednostima. Povećanjem veličine klastera linije počinju da konvergiraju i time daju realističniji opis sistema. Upravo ovakva razlika se javlja zbog efekta nelokalnih korelacija. Ali postavlja se pitanje koliko su one stvarno bitne pri opisu termodinamičkih i transportnih osobina sistema na temperaturama većim od kritičnih.



Slika 3.5: Fazni dijagram trougaone rešetke za različitu veličinu klastera

Glava 4

Rezultati na trougaonoj rešetki

Kao što je pomenuto, DMFT jednačine se zasnivaju na činjenici da u limitu beskonačnih dimenzija sopstvena energija $\Sigma(\vec{k}, \omega)$ postaje lokalna i time ne zavisi od impulsa \vec{k} , već samo od frekvence ω . Kada se takva aproksimacija primeni na sistem konačne dimenzije, zanemarujemo prostorne korelacije. U ovom poglavlju biće prikazano koliko se DMFT rešenje na trougaonoj rešetki razlikuje od egzaktnog, poređenjem sa Lanczos i klaster DMFT rešenjem. Prikazaćemo i kompresibilnost na kvadratnoj rešetki, kada su nelokalne korelacije znatno jače. Detaljno smo poredili IPT i CT-QMC metod za rešavanje DMFT jednačina.

4.1 Neinteragujuća gustina stanja i transportna funkcija trougaone rešetke

Gustina stanja daje broj elektronskih stanja po energiji i jediničnoj zapremini. Razne osobine sistema koje ćemo računati zavise od neinteragujuće gustine stanja

$$\rho(\epsilon) = \sum_k \delta(\epsilon - \epsilon_k), \quad (4.1.1)$$

gde je ϵ_k disperziona relacija, koja predstavlja zavisnost energije od impulsa \vec{k} . U modelu jake veze (tight-binding) [16], jednačina energije je:

$$\epsilon_k = -t \sum_r e^{i\vec{k}\vec{b}_r}, \quad (4.1.2)$$

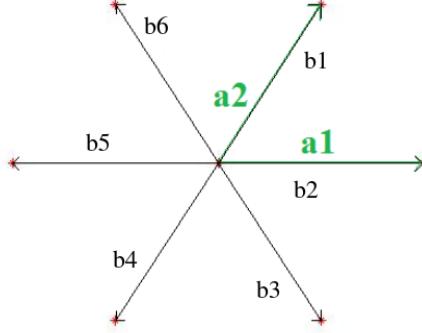
gde se sumira po najbližim susedima rešetke.

Na slici 4.1 su prikazani jedinični vektori \vec{a}_i i najbliži susedi trougaone rešetke \vec{b}_i :

$$\vec{a}_1 = a\hat{x}, \quad \vec{a}_2 = a\frac{1}{2}\hat{x} + a\frac{\sqrt{3}}{2}\hat{y}, \quad (4.1.3)$$

$$\begin{aligned} \vec{b}_1 &= a\frac{1}{2}\hat{x} + a\frac{\sqrt{3}}{2}\hat{y}, & \vec{b}_4 &= -a\frac{1}{2}\hat{x} - a\frac{\sqrt{3}}{2}\hat{y} \\ \vec{b}_2 &= a\hat{x}, & \vec{b}_5 &= -a\hat{x} \\ \vec{b}_3 &= a\frac{1}{2}\hat{x} - a\frac{\sqrt{3}}{2}\hat{y}, & \vec{b}_6 &= -a\frac{1}{2}\hat{x} + a\frac{\sqrt{3}}{2}\hat{y} \end{aligned} \quad (4.1.4)$$

Zamenom vektora (4.1.4) i $\vec{k} = k_x\hat{x} + k_y\hat{y}$ u opšti izraz (4.1.2) i sumacijom po najbližim



Slika 4.1: Trougaona rešetka je definisana sa dva jedinična vektora \vec{a}_i , dok postoji šest najbližih suseda \vec{b}_i .

susedima dobija se sledeće:

$$t \sum_r e^{i\vec{k}\vec{b}_r} = e^{ia(\frac{1}{2}k_x + \frac{\sqrt{3}}{2}k_y)} + e^{-ia(\frac{1}{2}k_x + \frac{\sqrt{3}}{2}k_y)} + e^{ia(\frac{1}{2}k_x - \frac{\sqrt{3}}{2}k_y)} + e^{-ia(\frac{1}{2}k_x - \frac{\sqrt{3}}{2}k_y)} + e^{iak_x} + e^{-iak_x} \quad (4.1.5)$$

Primenom izraza $\cos(x) = \frac{e^{ix} + e^{-ix}}{2}$, suma (4.1.5) se transformiše kao:

$$t \sum_r e^{i\vec{k}\vec{b}_r} = 2[\cos(\frac{a}{2}(k_x + \sqrt{3}k_y)) + \cos(\frac{a}{2}(k_x - \sqrt{3}k_y)) + \cos(ak_x)] \quad (4.1.6)$$

Izborom, konstante rešetke $a=1$ i hopping parametra $t=1$, uz transformacije trigonometrijskih funkcija disperziona relacija trougaone rešetke postaje:

$$\epsilon_k = -2(\cos(k_x) + 2\cos(\frac{k_x}{2})\cos(\frac{\sqrt{3}}{2}k_y)) \quad (4.1.7)$$

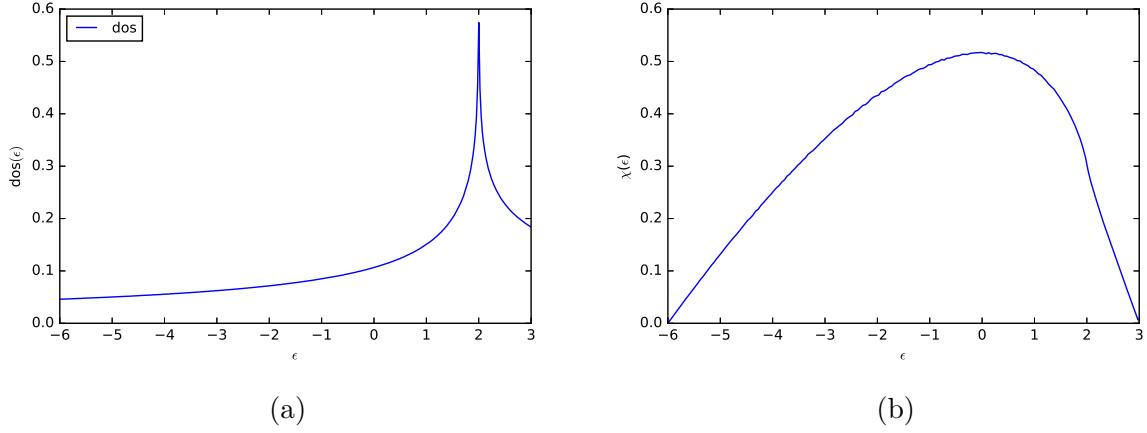
Nadalje ćemo koristiti jedinice u kojima je $a = 1$, $t = 1$, pri čemu je poluširina neinteragujuće zone trougaone rešetke $D = 4.5$, odnosno $W = 2D = 9$.

Kao što je neinteragujuća gustina stanja neophodna za određivanje termodinamičkih osobina, transportna funkcija

$$X(\epsilon) = \sum_k v_{kx}^2 \delta(\epsilon - \epsilon_k) = \sum_k (\frac{\partial \epsilon_k}{\partial k_x})^2 \delta(\epsilon - \epsilon_k) \quad (4.1.8)$$

determiniše transportne osobine elektrona.

Neinteragujuća gustina stanja (4.1.1) i transportna funkcija (4.1.8) mogu se izračunati numerički sa proizvoljnom tačnošću, primenom Monte Carlo metode, (slika 4.2). Kako je njihova forma proporcionalna Dirakovoј delta funkciji $\sum_k \delta(\epsilon - \epsilon_f)F(k)$, postupak za nalaženje ovih funkcija je identičan [11]. Kao prvo, treba odrediti koliko želimo ϵ tačaka, nakon čega generišemo slučajne tačke (k_x, k_y, k_z) između $[0,1]$ čime dobijamo ϵ_k . Ukoliko vrednost ϵ_k pripada n-toj epsilon tački, vrednost $\frac{1}{\Delta\epsilon} F(k)$ se dodaje datom ϵ . Proces se ponavlja N puta. Na kraju, ukupna dodeljena vrednost ϵ tačkama treba da se podeli sa brojem Monte Carlo koraka N . Povećanjem broja slučajnih tačaka povećava se i tačnost kojom je funkcija dobijena.



Slika 4.2: (a) Neinteragujuća gustina stanja trougaone rešetke
(b) Transportna funkcija trougane rešetke

4.2 Energija

Ukupna energija sistema na konačnoj temperaturi T je po definiciji srednja vrednost Hamiltonijana.[17][11]

$$E(T) = \frac{1}{N} \sum_{k,\sigma} \epsilon_k \langle d_{k\sigma}^+ d_{k\sigma} \rangle + \frac{U}{N} \sum_i \langle n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \rangle, \quad (4.2.1)$$

gde prvi član predstavlja kinetičku a drugi interakcionu energiju.

Ukoliko u drugom članu prosumiramo po spinu jednačina dobija sledeći oblik

$$E(T) = \frac{1}{N} \sum_{k,\sigma} \epsilon_k \langle d_{k\sigma}^+ d_{k\sigma} \rangle + \frac{U}{N} \frac{1}{2} \sum_{k\sigma} \langle n_{i\sigma} n_{i\bar{\sigma}} \rangle. \quad (4.2.2)$$

Energiju sada treba transformisati, tako da u njoj figurišu Green-ove funkcije, jer je upravo to ono što računamo [18]. Polazi se od jednačine kretanja i antikomutacione fermionske relacije,

$$\frac{\partial d_{k\sigma}(\tau)}{\partial \tau} = [\hat{K}, d_{k\sigma}], \quad \{d_{k\sigma}, d_{k'\sigma'}^\dagger\} = \delta_{k,k'} \delta_{\sigma\sigma'}, \quad (4.2.3)$$

gde je $K = H - \mu \sum_{k\sigma} n_\sigma = \sum_{k\sigma} [(\epsilon_k - \mu) n_{k\sigma} + \frac{1}{2} U n_{k\sigma} n_{k\bar{\sigma}}]$ definisano u velikom kanonskom ansamblu, $[a, b] = ab - ba$ je komutator, dok je $\{a, b\} = ab + ba$ antikomutator.

Ukoliko se reši jednačina kretanja za operatore $\langle d_{k\sigma}^+ d_{k\sigma} \rangle = G(\tau \rightarrow 0^-)$, prepoznaće se član koji figuriše u izrazu za energiju (4.2.2)

$$\begin{aligned} \frac{\partial G(\tau)}{\partial \tau} \Big|_{\tau \rightarrow 0^-} &= \langle d_{k\sigma}^+ \frac{\partial d_{k\sigma}(\tau)}{\partial \tau} \rangle = \langle d_{k\sigma}^+ [\hat{K}, d_{k\sigma}] \rangle \\ &= -(\epsilon_k - \mu) G_k(\tau) \Big|_{\tau \rightarrow 0^-} - U \langle n_{k\sigma} n_{k\bar{\sigma}} \rangle. \end{aligned} \quad (4.2.4)$$

Energija izražena preko Green-ovih funkcija u imaginarnom vremenu je onda jednaka:

$$E(T) = \frac{1}{2N} \sum_{k\sigma} (\epsilon_k + \mu) G_k(\tau) \Big|_{\tau \rightarrow 0^-} - \frac{1}{2N} \sum_{k\sigma} \frac{\partial G_k}{\partial \tau} \Big|_{\tau=0^-} \quad (4.2.5)$$

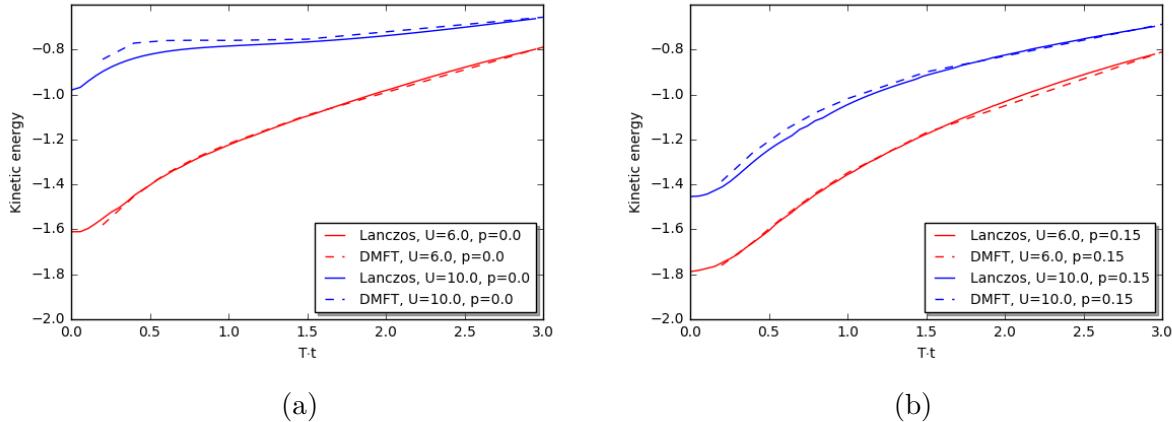
Upotreboom Furije-ovog transforma $G(\tau) = \frac{1}{\beta} \sum_n G(i\omega_n) e^{-i\omega_n \tau}$, dobija se izraz preko Mat-subara frekvenci

$$E(T) = \frac{1}{\beta} \frac{1}{N} \sum_{n,k} (i\omega_n + \epsilon_k + \mu) G_k(i\omega_n) e^{-i\omega_n 0^+}. \quad (4.2.6)$$

Takođe, na jednostavan način izdvaja se kinetička energija sistema:

$$E_k(T) = \frac{2}{N} \sum_k \epsilon_k G_k(\tau)|_{\tau \rightarrow 0^-} = \frac{2}{\beta} \frac{1}{N} \sum_{n,k} \epsilon_k G_k(i\omega_n) e^{-i\omega_n 0^-}. \quad (4.2.7)$$

Energija se može izračunati numerički u obe reprezentacije s tim što na Matsubara osi treba pažljivo tretirati visokofrekventne članove. Implementacija je opisana u dodatku D. Na slici 4.3 prikazana je kinetička energija dobijena DMFT (isprekidane) i Lanczos (pune linije) metodama. Slaganje je veće pri slaboj interakciji dok povećanjem U javlja se razlika prvenstveno na nižim temperaturama. U visokotemperaturnom režimu DMFT i Lanczos se gotovo poklapaju i podjednako dobro određuju kinetičku energiju.



Slika 4.3: Poredjenje DMFT (isprekidane linije) i Lanczos (pune linije) kinetičke energije u zavisnosti od temperature pri interakcijama $U=6$ (crvene linije) i $U=10$ (plave linije) za (a) polupunjenu (doping $p=0$) i (b) dopiranu rešetku (doping $p=0.15$)

4.3 Specifična toplota i entropija

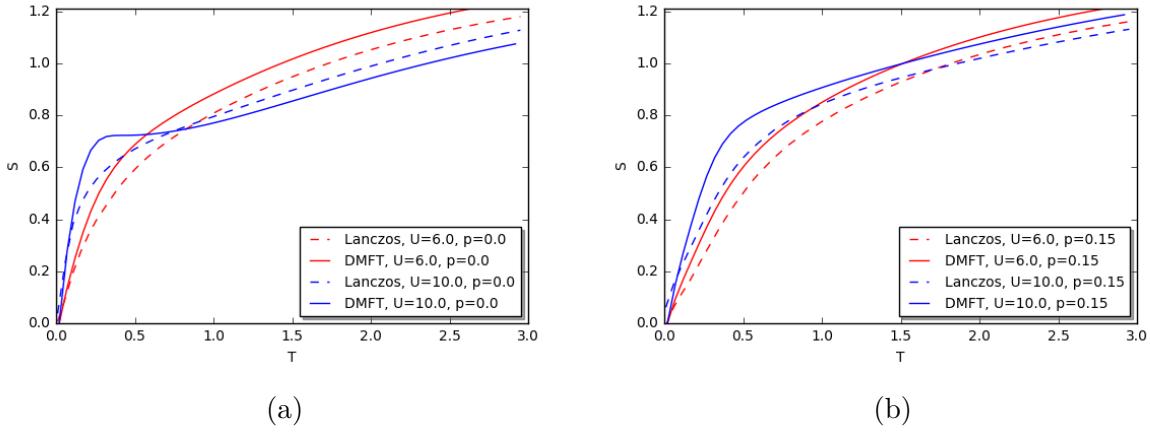
Specifična toplota je data kao totalni izvod energije po temperaturi:

$$C_v(T) = \frac{dE(T)}{dT}. \quad (4.3.1)$$

Poznavanjem specifične toplote C_v entropija se dobija na sledeći način:

$$S(T) = \int_0^T \frac{C_v(T')}{T'} dT'. \quad (4.3.2)$$

Sa Lanczos rezultatima [19] poredena je entropija (slika 4.4). Kako DMFT aproksimacija ne uključuje nelokalne korelacije ne može se očekivati ista entropija. Bez obzira na to dobijaju se iznenadjuće bliski rezultati. Entropija izgleda samo pomereno za konstantnu vrednost, zbog razlike u specifičnoj toploti na niskim temperaturama. Na niskim temperaturama kada smo u režimu Fermi tečnosti (*Fermi liquid*), specifična toplota C_v linearno raste sa T , $C_v = \gamma T$, pa je i entropija proporcionalna temperaturi. Nagib $\gamma \sim m^*/m \sim Z^{-1}$, zavisi od kvazičestičnog faktora $Z = (1 - \left. \frac{\partial \Sigma'(\omega)}{\partial \omega} \right|_{\omega \rightarrow 0})^{-1}$, odnosno efektivne mase $m^*/m \sim Z^{-1}$. Nagib se povećava približavanjem metal-izolator prelazu. Na visokim temperaturama entropija teži vrednosti u atomskom limitu, kada je $S = 2 \ln 2$, gde prefaktor 2 potiče od sumacije po spinu, a $\ln 2$ od dva moguća stanja spina \uparrow i \downarrow .



Slika 4.4: Entropija u funkciji temperature dobijena DMFT (pone linije) i Lanczos (isprekidane linije) metodama. (a) Nedopiran slučaj ($p=0$), (b) dopiran sistem ($p=0.15$). Rezultati su za interakcije $U=6$ (crvene linije) i $U=10$ (plave linije).

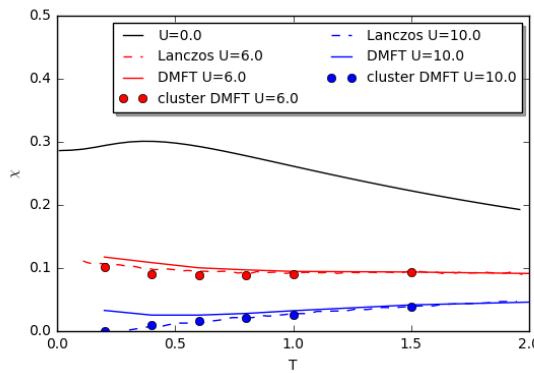
4.4 Kompresibilnost

Temperaturna zavisnost kompresibilnosti (*charge compressibility*)

$$\chi(T) = \frac{\partial n}{\partial \mu} \quad (4.4.1)$$

na polupotpunjenoj trougaonoj rešetki je prikazana na slici 4.5.

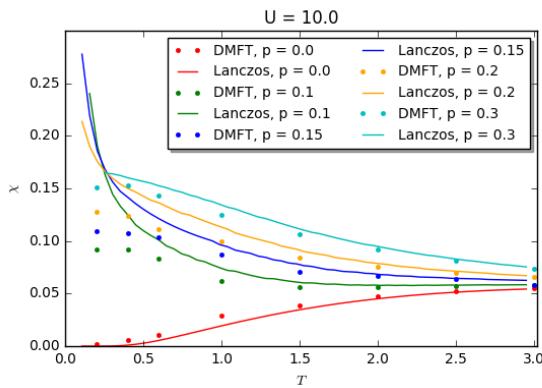
Neinteragujući slučaj ($U=0$) je prikazan crnom linijom dok uključivanjem interakcije kompresibilnost opada. Na višim temperaturama, $T/t \gtrsim 1$, χ ima slabu zavisnost od temperature, a rešenja DMFT i Lanczos metodama se praktično poklapaju. Međutim, na nižim temperaturama postoji razlika između ova dva rešenja, koja je najizraženija za $U/t = 10$, kada sistem ulazi u izolatorsku fazu pri čemu se otvara energetski procep, što DMFT rešenje ne pokazuje. Uvođenje sopstvene energije koja približno uračunava nelokalne korelacije u klaster DMFT rešenju, daje rezultate koji se veoma dobro slažu sa Lanczos rezultatima, čak i na niskim temperaturama.



Slika 4.5: Poređenje kompresibilnosti DMFT rešenja sa rezultatima dobijenim klaster DMFT i Lanczos metodama na trougaonoj rešetki.

4.4.1 Nelokalne korelacije na kvadratnoj rešetki

Jedan od razloga zašto trougaona rešetka predstavlja interesantan sistem za ispitivanje jakih korelacija u materijalima je upravo pojava magnetne frustracije rešetke, koja smanjuje uticaj nelokalnih korelacija. Sa druge strane, ukoliko je Hubbard-ov model zadat na kvadratnoj rešetki, nelokalne korelacije su izraženije i tada ne bi mogli da očekujemo toliko dobro slaganje DMFT i Lanczos rezultata. Na primeru kompresibilnosti se primećuje da je razlika između DMFT i Lanczos rešenja mnogo veća nego na trougaonoj rešetki. Razlika je najveća pri malom dopiranju, kada su efekti korelacija najizraženiji. Međutim, na višim temperaturama razlika između metoda se smanjuje.



Slika 4.6: Kompresibilnost na kvadratnoj rešetki za različite vrednosti popunjenoštvi, dobijena DMFT i Lanczos metodama.

4.5 Transport elektrona

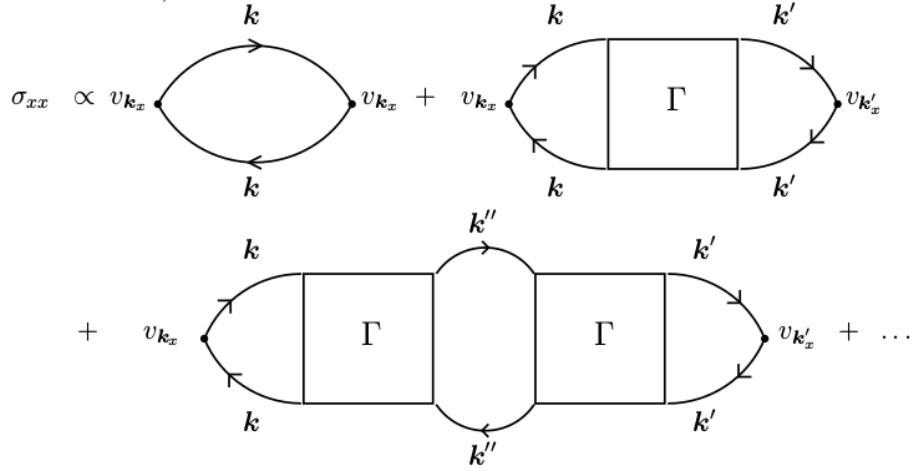
Optička provodnost je funkcija linearnog odziva sistema σ_{kl} i povezuje operator gustine struje j i primenjeno električno polje E . Odnosi se na transport elektrona u materijalu. Operator gustine struje je po definiciji $\vec{j} = \sum_{k\sigma} e v_k n_{k\sigma}$, gde je brzina čestice u Hubbard-ovom modelu data sa $v_k = \frac{1}{\hbar} \nabla \epsilon_k$. [2] Tenzor optičke provodnosti se može definisati preko korelace funkcije $\langle j_l | j_k \rangle(\omega + i\delta)$ (detaljno izvođenje ove formule je dato Kubo formulom za optičku provodnost, u dodatku):

$$\begin{aligned} \sigma_{kl} &= \frac{1}{V} \text{Re} \left[\frac{1}{i\omega} \langle j_l | j_k \rangle (\omega + i\delta) \right] \\ &= \frac{1}{V} \frac{1}{i\omega} \sum_{kk'} \sum_{\sigma} v_k v_k' \langle n_{k\sigma} | n_{k'\sigma} \rangle (\omega). \end{aligned} \quad (4.5.1)$$

Dijagramski razvoj ovog izraza je prikazan na slici 4.7, gde je u višim perturbativnim članovima Γ ireducibilna verteksna funkcija [7] [20]. U limitu beskonačnih dimenzija, Γ je u potpunosti lokalno, odnosno nezavisno od k i k' . Tada je moguće zasebno izračunati segmentne drugog dijagrama. Kako je $\epsilon_k = \epsilon_{-k}$ parno (iz razloga što je $\epsilon_k = f(\cos(k_x))$), čime su $G_k = G_{-k}$ i $v_k = -v_{-k}$, parna, odnosno neparna funkcija dobija se da je $\sum_k v_{k_x} G_k(i\omega_n) G_k(i\omega_n + i\omega'_n)$ jednaka nuli.

Drugim rečima, doprinos optičkoj provodnosti daje samo prvi član razvoja:

$$\sigma_{xx}(i\omega'_n) = \frac{e^2}{V \hbar^2 \omega' \beta} \sum_{k,\sigma,n} v_{k_x}^2 G_{k,\sigma}(i\omega_n) G_{k,\sigma}(i\omega_n + i\omega'_n) \quad (4.5.2)$$



Slika 4.7: Perturbativni razvoj optičke provodnosti. Irreducibilni deo vertекса је локалан, вектори k и k' се појављују на различитим странама вертекса и њихова сумација је независна једна од друге. При томе вертекс корекција постаје једнака нули а у perturbativnom развоју преостаје само први члан.

Sumacijom po spinu i prelaskom na integral po energiji, dobija se sledeћи израз:

$$\sigma_{xx}(i\omega'_n) = \frac{2e^2}{\hbar^2\omega'} \frac{N}{V} \int d\epsilon X(\epsilon) \frac{1}{\beta} \sum_n G_\epsilon(i\omega_n) G_\epsilon(i\omega_n + i\omega'_n) \quad (4.5.3)$$

где дефинишемо транспортну функцију $X(\epsilon) = \frac{1}{N} \sum_k v_{kx}^2 \delta(\epsilon - \epsilon_k)$, која узима у обзир ефекте који потичу од решетке [11].

Аналитичким произвођењем последње једначиње на реалну осу добија се:

$$Re(\sigma(\omega')) = \sigma_0 \int d\epsilon \int d\omega X(\epsilon) A(\epsilon, \omega) A(\epsilon, \omega + \omega') \frac{f(\omega) - f(\omega + \omega')}{\omega'} \quad (4.5.4)$$

где су $\sigma_0 = \frac{2\pi e^2}{\hbar a V}$ и $A(\epsilon, \omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im}(\frac{1}{\omega - (\epsilon - \mu) - \Sigma(\omega)})$.

На основу сумационог правила, интеграл од $\sigma(\omega')$ по фреквencама је пропорционалан кинетичкој енергији [21].

$$\int d\omega \sigma(\omega) = -E_k \frac{\pi}{4V} \quad (4.5.5)$$

За коришћене параметре проверили smo да је испunjено f-сумационо правило. Када у једначињи (4.5.4) $\omega' \rightarrow 0$, добија се DC проводност (у xx смеру):

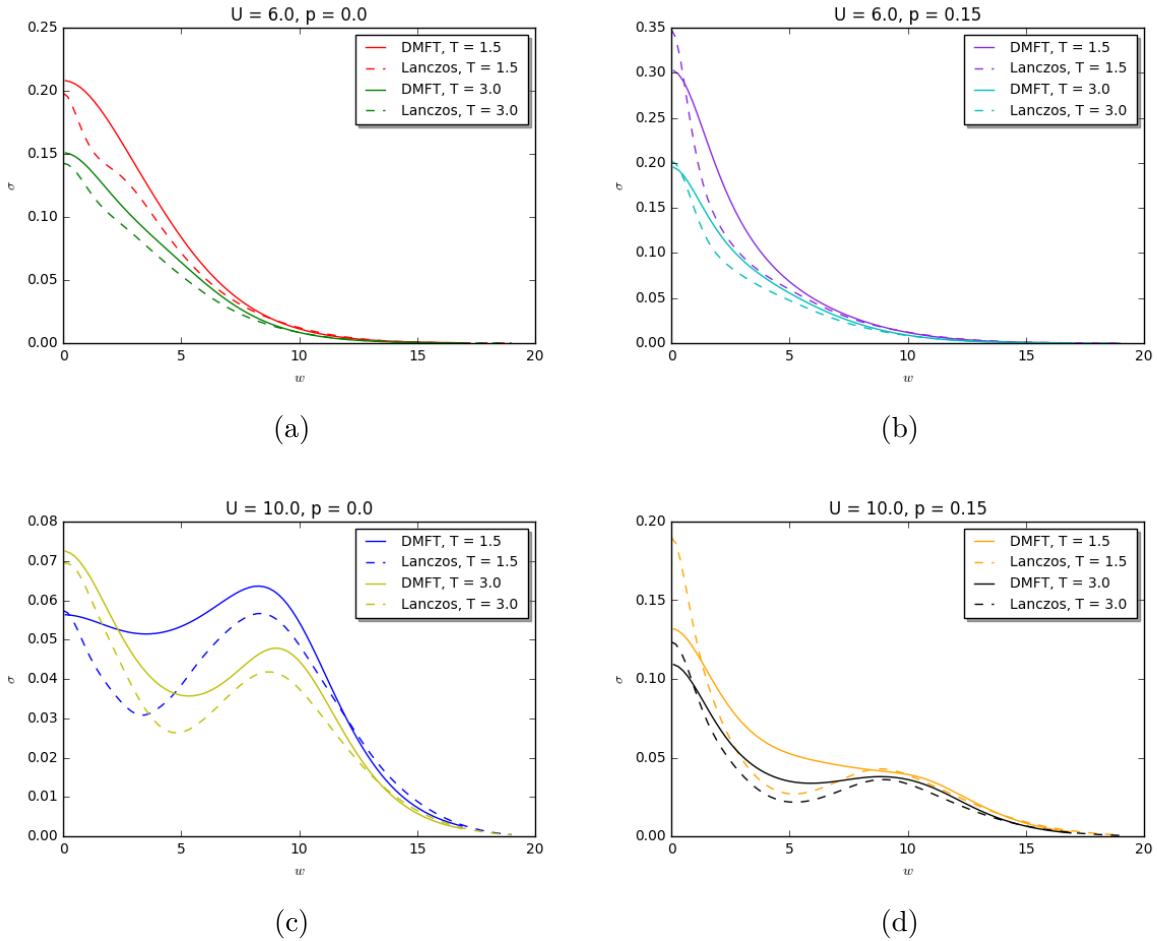
$$Re(\sigma(0)) = \sigma_0 \int d\epsilon \int d\omega X(\epsilon) A(\epsilon, \omega)^2 \frac{\partial f(\omega)}{\partial \omega}, \quad (4.5.6)$$

односно отпорност је $\rho(T) = 1/\sigma_{xx}(0)$.

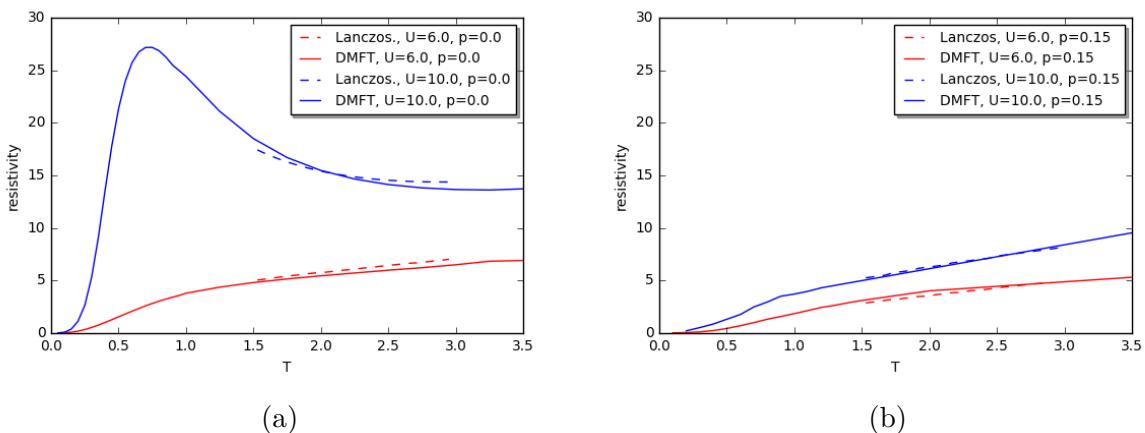
Lanczos метод, не може тако једноставно да израчунати струјне корелационе функције на ниским температурама и из тог разлога су нам били доступни Lanczos резултати оптичке проводности и отпорности на температурама $T/t > 1.5$.

Поређење оптичке проводности добијене из DMFT и Lanczos резултата је приказано на слици 4.8. Може се рећи да је слaganje резултата у оквиру грешке метода, која може потичи како од Lanczos методе или исто тако и од коришћене методе за аналитичког производње DMFT резултата на реалној фреквентној оси.

Такође, израчунали smo температурну зависност отпорности DMFT методом. На ниским температурама отпорност има зависност T^2 што је типично за Ферми течности. Добијене резултате smo и упоредили са отпорношћу одређену из Lanczos резултата. На температурама $T/t > 1.5$, резултати се у великој мери поклапају.



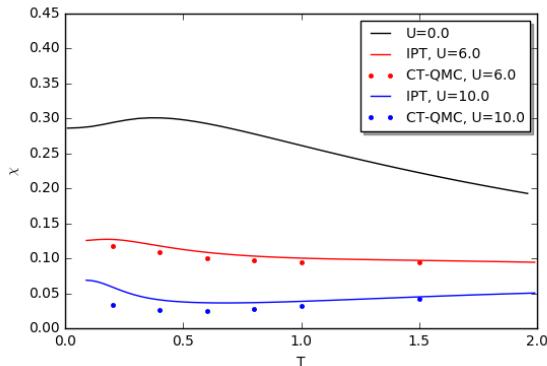
Slika 4.8: Optička provodnost za temperature $T=1.5$ i $T=3$, na osnovu DMFT-IPT i Lanczos rezultata. Korišćeni su sledeće vrednosti interakcije i dopinga: (a) $U=6$, $p=0$ (b) $U=6$, $p=0.15$ (c) $U=10$, $p=0$ (d) $U=10$, $p=0.15$



Slika 4.9: Otpornost u zavisnosti od temperature. DMFT (pone linije) i Lanczos(isprekidane linije) za (a) doping $p=0$ i (b) $p=0.15$ pri interakcijama $U=6$ (crvene linije) i $U=10$ (plave linije).

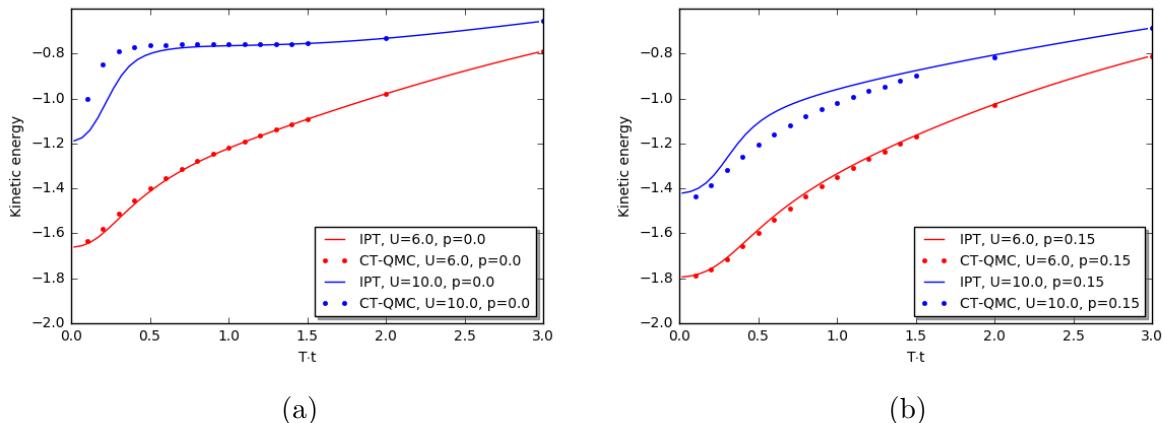
4.6 Poređenje IPT i CT-QMC rezultata za trougaonu rešetku

Do sada su bili predstavljeni rezultati dobijeni DMFT metodom. Ali treba napomenuti da su korišćenja dva pristupa za rešavanje problema nečistoće IPT i CT-QMC, a u ovom odeljku je prikazana razlika u dobijenim rezultatima. Glavna prednost IPT-a je upravo brzina izvršavanja. Iako CT-QMC rezultate možemo dobiti sa proizvoljnom tačnošću (povećanjem broja Monte Carlo koraka), IPT metod na višim temperaturama daje praktično isto rešenje kao CT-QMC, što se i vidi u kompresibilnosti (slika 4.10) i kinetičke energije (slika 4.11). Isto tako, gotovo da ne postoji razlika u rezultatima pri slaboj interakciji u opsegu ispitivanih temperatura, kako na polupopunjenoj, tako i na dopiranoj rešetki.



(a)

Slika 4.10: Kompresibilnost za polupopunjenu rešetku izračunata iz IPT (pune linije) i CT-QMC (tačke), pri interakcijama $U = 6$ (crveno) i $U = 10$ (plavo).



(a)

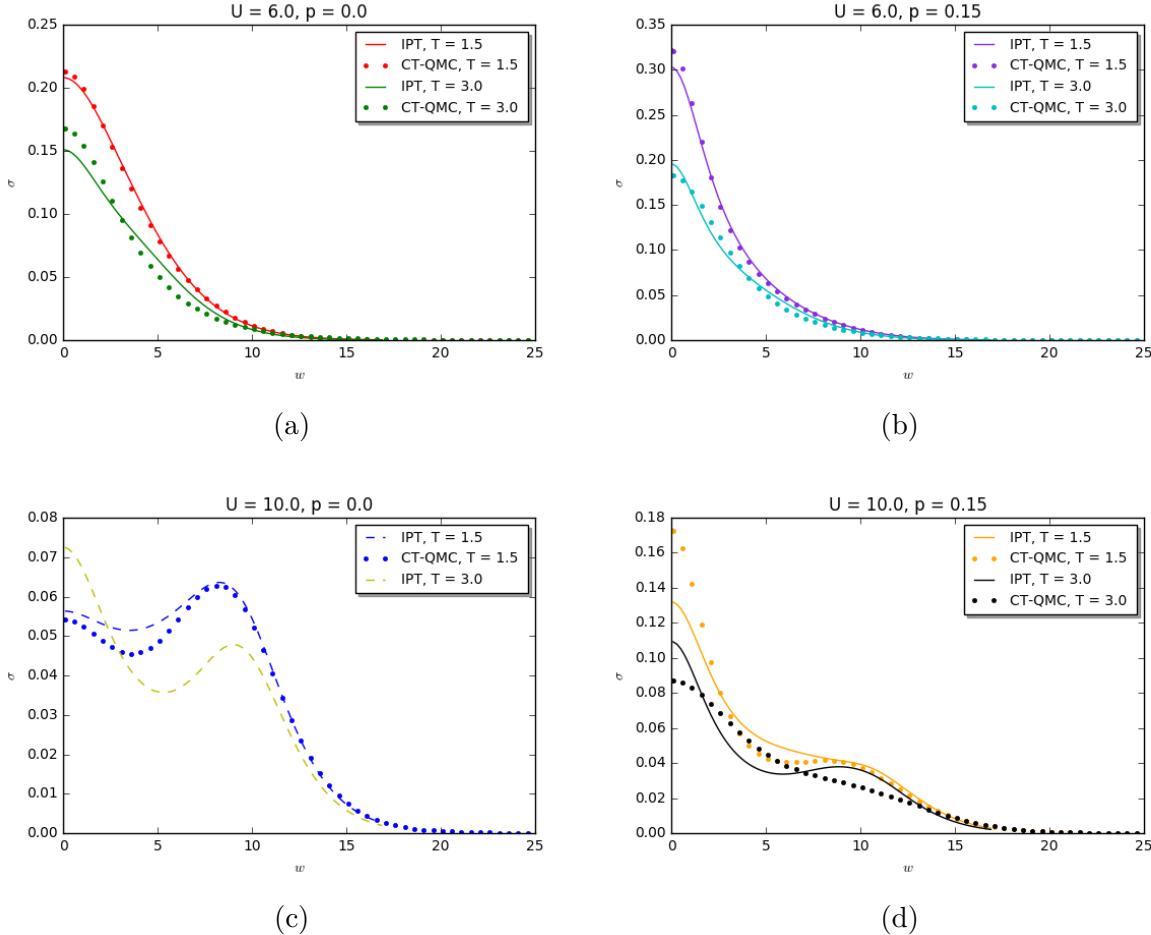
(b)

Slika 4.11: Zavisnost kinetičke energije od temperature: IPT (pune linije) i CT-QMC (tačke), pri interakcijama $U = 6$ (crveno) i $U = 10$ (plavo). za (a) polupopunjenu rešetku, $p = 0$, (b) dopiranoj rešetku, $p = 0.15$

Oba metoda direktno računaju Green-ove funkcije na imaginarnoj osi. Da bi se dobile transportne osobine, potrebno je izvršiti analitičko produženje na realnu frekventnu osu. Kod rezultata dobijenih IPT metodom je pogodno koristiti Pade produženje, ali za

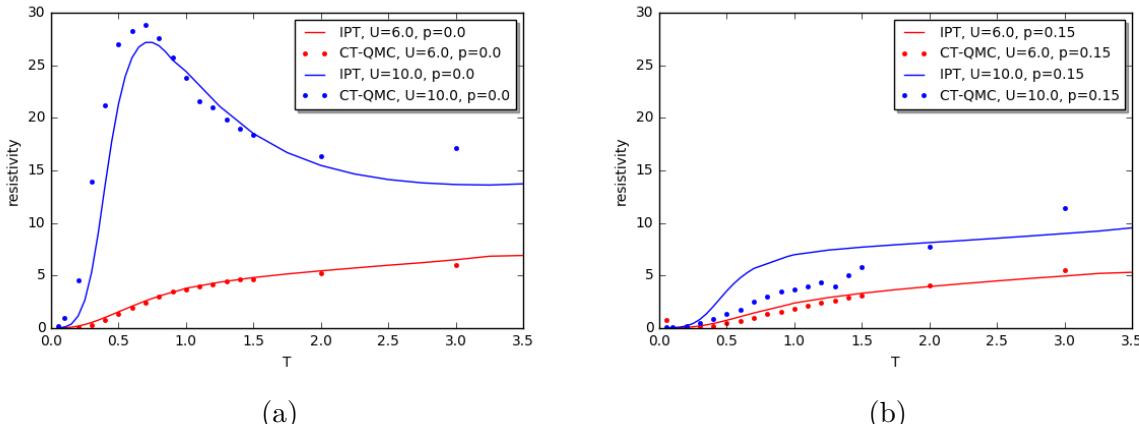
funkcije, koje se dobijaju CT-QMC metodom, kod kojih dolazi do pojave šuma, metod maksimalne entropije se pokazao uspešnim.

Prikazani su rezultati optičke provodnosti (slika 4.12) i otpornosti (slika 4.13). Opet dolazimo do sličnih zaključaka, za manju vrednost interakcije rezultati optičke provodnosti i otpornosti se poklapaju.



Slika 4.12: Optička provodnost za temperature $T=1.5$ i $T=3$, na osnovu IPT(pune linije) i CT-QMC (tačke) rezultata. Korišćene su sledeće vrednosti interakcije i dopinga:

(a) $U=6, p=0$, (b) $U=6, p=0.15$, (c) $U=10, p=0$, (d) $U=10, p=0.15$



Slika 4.13: Otpornost u zavisnosti od temperature. IPT (pune linije) i CT-QMC(tačke) za (a) doping $p=0$ i (b) $p=0.15$ pri interakcijama $U=6$ (crvene linije) i $U=10$ (plave linije).

Međutim, na niskim temperaturama kada je $U>W$, IPT se ne slaže toliko dobro sa CT-

QMC rezultatima i aproksimacija postaje neprimenljiva u datom opsegu parametara [11]. To je primećeno i u našim rezultatima. Za vrednost interakcije $U=10$, na polupotpunjenoj rešetki ($p=0$) postoje mala odstupanja na temperaturama $T \leq 0.7$. Povećanjem dopinga, $p=0.15$, razlika u rezultatima se povećava i prisutna je do viših temperatura, $T \leq 1.5$.

Bez obzira na to IPT metod nalazimo primenljivim u slučajevima kada interakcija nije toliko jaka, tj. dok se sistem nalazi metalnoj fazi, kao i u visokotemperaturnom i visokofrekventnom režimu.

Glava 5

Zaključak

Primena dinamičke teorije srednjeg polja na jako korelisne elektronske sisteme uspešno je opisala metal-izolator prelaz, na polupopunjenoj rešetki. Takođe DMFT omogućava i ispitivanje dopiranog sistema. U ovom radu su izračunate termodinamičke osobine (kinetička energija, entropija i kompresibilnost), kao i transportne (optička provodnost i otpornost) za Hubbard-ov model na trougaonoj rešetki, primenom DMFT metoda. DMFT rezultati su upoređeni sa rezultatima dobijenim Lanczos metodom, koji uračanava nelokalne korelacije ali je ograničen na konačnu rešetku sa najviše 16 čvorova.

Sa faznog dijagrama za Hubbard-ov model na trougaonoj rešetki, prikazanog na slici 3.5. zaključujemo da nelokalne korelacije smanjuju kritičnu interakciju za metal-izolator prelaz i da su veoma važne na temperaturama $T/t < 0.1$. Da bismo utvrdili značaj nelokalnih korelacija na $T/t > 0.1$, rešili smo DMFT jednačine za dve vrednosti interakcije $U = 6$ i $U = 10$, za polupopunjeni i dopirani sistem.

Kompresibilnost smo izračunali DMFT metodom i uporedili sa rezultatima dobijenim Lanczos metodom i klaster DMFT metodom za temperature $T/t > 0.1$. Za umerenu jačinu interakcije, $U/t = 6$, ustanovli smo malu kvantitativnu razliku u kompresibilnosti za $T \lesssim 0.7$. Za jaku interakciju $U/t = 10$, DMFT predviđa metalno rešenje dok nelokalne korelacije dovode do otvaranja energetskog procepa i nulte kompresibilnosti u Lanczos rešenju, zbog čega postoji velika razlika u rešenjima na niskim temperaturama. Proverili smo da se Lanczos i klaster DMFT rešenje poklapaju i u ovom opsegu parametara. Na visim temperaturama, $T/t \gtrsim 0.7$, DMFT, klaster DMFT i Lanczos rešenje se prakticno poklapaju, cak i u slučaju jake interakcije U . Na primeru kompresibilnosti jasno uočavamo razliku između trougaone i kvadratne rešetke. U režimu jakih korelacija, za $U = 10$ pri malom dopiranju p , postoji značajna razlika u kompresibilnosti i za više temperature od $T \sim 0.7$.

Kinetička energija se veoma dobro slaže sa Lanczos rešenjem, pogotovo za slabiju interakciju $U=6$. Dobijeni DMFT rezultati za entropiju linearno rastu sa temperaturom u režimu Fermi tečnosti, na niskim temperaturama. U visokotemperturnom režimu entropija se približava vrednosti $2 \ln 2$, što odgovara entropiji u atomskom limitu. Rezultati su bliski sa rezultatima iz Lanczos rešenja, ali je potrebno uraditi detaljnije poređenje.

Izračunali smo optičku i DC provodnost iz DMFT rezultata primenom Kubo formule, i uporedili ih sa rezultatima dobijenim Lanczos metodom na temperaturama, $T/t > 1.5$.

Ustanovljano je slaganje sa Lanczos rezultatima. Poređenje na nižim temperaturama još nije urađeno zbog poteškoća u proračunu strujnih korelacionih funkcija Lanczos metoda.

Pri rešavanju DMFT jednačina korišćena su dva metoda IPT i CT-QMC. IPT metod je aproksimativan ali veoma brz. Takođe, korišćenjem TRIQS paketa za numeričke simulacije, implementirano je rešenje IPT jednačina u programskom jeziku Python. Za rešavanje DMFT jednačina CT-QMC metodom, iskorišćen je CT-HYB kod, koji je javno dostupan u okviru TRIQS paketa. Uporedili smo Green-ove funkcije i različite opservable na temperaturama $T > 0, 1$. Utvrđili smo da se rezultati u ovom opsegu temperatura dobro slažu osim na niskim temperaturama u blizini metal-izolator prelaza. Pored brzine izvršavanja koda, IPT metod ima prednost jer analitičko produženje na realno-frekventnu osu može da se uradi veoma precizno Pade metodom, dok za Green-ove funkcije dobijene CT-QMC metodom, mora se koristiti metod maksimalne entropije, zbog numeričkog šuma, što unosi odredenu nepreciznost u rezultate za provodnost.

Dodatak A

Atomski limit Hubbard-ovog modela

Jedan od važnih limita Hubbard-ovog modela je atomski limit u kome elektroni postaju lokalizovani na sajtvima rešetke. Tada jedan sajt može biti prazan, okupiran sa jednim ili dva elektrona pri čemu su svojstvena stanja: $|0\rangle|\uparrow\rangle$, $|\downarrow\rangle$, $|\uparrow\downarrow\rangle$. Kako elektroni ne mogu da prelaze sa sajta na sajt, hopping parametar postaje jednak nuli ($t=0$), [22] dok Hubbard-ov hamiltonijan dobija sledeći oblik:

$$H = U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (\text{A.0.1})$$

Ukoliko se uvede hemijski potencijal μ i broj čestica N , u velikom kanonskom ansamblu definišemo:

$$K = H - \mu N = H - \mu \sum_i (n_{i\uparrow} + n_{i\downarrow}) \quad (\text{A.0.2})$$

Na osnovu fermionskih antikomutacionih relacija važi, $\langle dd^\dagger \rangle + \langle d^\dagger d \rangle = 1$, odnosno $\langle d^\dagger d \rangle = \langle n \rangle$ i $\langle dd^\dagger \rangle = 1 - \langle n \rangle$. Srednje vrednosti u velikom kanonskom ansamblu su:

$$\begin{aligned} \langle d_\uparrow d_\uparrow^\dagger \rangle &= \frac{1}{Z} \text{Tr}(e^{-\beta \hat{K}} d_\uparrow d_\uparrow^\dagger) \\ &= \frac{1}{Z} \langle 0 | d_\uparrow | \uparrow \rangle \langle \uparrow | d_\uparrow^\dagger | 0 \rangle + \frac{e^{\beta \mu}}{Z} \langle \downarrow | d_\uparrow | \uparrow \downarrow \rangle \langle \uparrow \downarrow | d_\uparrow^\dagger | \downarrow \rangle \\ &= \frac{1}{Z} [1 + e^{\beta \mu}] = 1 - \langle n_\uparrow \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.0.3})$$

$$\begin{aligned} \langle d_\uparrow^\dagger d_\uparrow \rangle &= \frac{1}{Z} \text{Tr}(e^{-\beta \hat{K}} d_\uparrow^\dagger d_\uparrow) \\ &= \frac{e^{\beta \mu}}{Z} \langle \uparrow | d_\uparrow^\dagger | 0 \rangle \langle 0 | d_\uparrow | \uparrow \rangle + \frac{e^{\beta(2\mu-U)}}{Z} \langle \uparrow \downarrow | d_\uparrow^\dagger | \downarrow \rangle \langle \downarrow | d_\uparrow | \uparrow \downarrow \rangle \\ &= \frac{1}{Z} [e^{\beta \mu} + e^{\beta(2\mu-U)}] = \langle n_\uparrow \rangle \end{aligned}$$

Sada možemo da izračunamo Green-ovu funkciju u atomskom limitu:

$$\begin{aligned} G_\sigma(\tau) &= -\langle d_\sigma(\tau) d_\sigma^\dagger(0) \rangle = -\langle d_\uparrow(\tau) d_\uparrow^\dagger(0) \rangle \\ &= -\frac{1}{Z} \text{Tr}(e^{-\beta \hat{K}} e^{\hat{K}\tau} d_\uparrow e^{-\hat{K}\tau} d_\uparrow^\dagger) \\ &= -\frac{1}{Z} [e^{\mu\tau} + e^{\beta\mu + \tau(\mu-U)}] \end{aligned} \quad (\text{A.0.4})$$

Furije transformom prelazi se u Matsubara reprezentaciju. Znajući da je $e^{i\omega_n \beta} = -1$ dobija se sledeće:

$$G_\sigma(i\omega_n) = \int_0^\beta d\tau e^{i\omega_n \tau} G_\sigma(\tau) = \frac{1}{Z} \frac{e^{\beta\mu} + 1}{i\omega_n + \mu} + \frac{1}{Z} \frac{e^{\beta\mu} + e^{(2\mu-U)\beta}}{i\omega_n + \mu - U} \quad (\text{A.0.5})$$

Poređenjem sa jednačinama A.0.3 Green-ovu funkciju u atomskom limitu postaje egzaktna i nezavisna od momenta k :

$$G_{atom}(i\omega_n) = \frac{1 - \langle n \rangle}{i\omega_n + \mu} + \frac{\langle n \rangle}{i\omega_n + \mu - U} \quad (\text{A.0.6})$$

Dakle, kako ništa ne zavisi od disperzije energije po k Green-ova funkcija rešetke (jednačina 2.1.3) je jednaka lokalnoj Green-ovoj funkciji, gde sada figuriše sopstvena energija atomskog limita $\Sigma_{atom}(i\omega_n)$:

$$G_{atom}(i\omega_n) = \frac{1}{i\omega_n - \epsilon_f - \Sigma_{atom}(i\omega_n)} \quad (\text{A.0.7})$$

Odnosno, ukoliko izrazimo sopstvenu energiju, dobija se:

$$\Sigma_{atom}(i\omega) = Un + \frac{n(1-n)U^2}{i\omega + \mu - (1-n)U} \quad (\text{A.0.8})$$

Fizički gledano, dobijeni rezultat za Green-ovu funkciju (A.0.6) kaže da ukoliko je popunjenost elektrona spina $|\uparrow\rangle$, n , tada će njegova energija biti $-\mu + U$, a energija elektrona u stanju $|\downarrow\rangle$ je jednaka $-\mu$. Da bi se dobio simetričan slučaj, na polupopunjenoj rešetki $n = \frac{1}{2}$, vidi se da hemijski potencijal uzima konstantnu vrednost $\mu = \frac{U}{2}$. Ukoliko je $t \neq 0$, ali $U/t \gg 1$, tada je sistem u izolatorskoj fazi, a spektralna funkcija se sastoji od dva šira pika na energijama $\pm \frac{U}{2}$, razdvojenih gap-om.

Dodatak B

Sopstvena energija u drugom redu teorije perturbacije

Da bi se Iterativna Perturbativna teorija primenila za proizvoljnu popunjenošću rešetke, sopstvena energija se aproksimira ansatz-om (3.1.1), gde su nepoznati parametri A i B. Oni će biti određeni na osnovu visokofrekventnog i atomskog limita sopstvene energije $\Sigma(i\omega_n)$. [9][10]

U drugom redu teorije perturbacije $\Sigma_0^{(2)} = U^2 G_0^2(\tau) G_0(-\tau)$, odnosno izraženo preko spektralnih funkcija $A_0(\epsilon) = -\frac{1}{\pi} G_0(\epsilon)$

$$\begin{aligned} \Sigma_0^{(2)}(i\omega_n) = & U^2 \int d\epsilon_1 d\epsilon_2 d\epsilon_3 \frac{A^0(\epsilon_1) A^0(\epsilon_2) A^0(\epsilon_3)}{\omega + \epsilon_1 - \epsilon_2 - \epsilon_3} \\ & \left(f(\epsilon_1) f(\epsilon_2) f(-\epsilon_3) + f(-\epsilon_1) f(-\epsilon_2) f(\epsilon_3) \right) \end{aligned} \quad (\text{B.0.1})$$

gde je Fermi funkcija definisana kao: $f(\epsilon) = \frac{1}{e^{\beta\epsilon} + 1}$. Popunjenošću koja odgovara pomoćnoj Green-ovoj funkciji G_0 je $n_0 = \int d\epsilon A^0(\epsilon) f(\epsilon)$.

Na osnovu ovoga se dobija $\Sigma_0^{(2)}$ u fisoko frekventnom limitu ($\omega \rightarrow \infty$):

$$\Sigma_{0hf}^{(2)}(i\omega_n) = U^2 n_0 (1 - n_0) \frac{1}{i\omega} \quad (\text{B.0.2})$$

kao i u atomskom limitu ($\epsilon_i \rightarrow \epsilon_f = -\mu_0$),

$$\Sigma_{0atom}^{(2)}(i\omega_n) = U^2 n_0 (1 - n_0) \frac{1}{i\omega + \mu_0}. \quad (\text{B.0.3})$$

Računanje konstante A

Korišćenjem spektralne reprezentacije Green-ove funkcije moguće je odrediti visokofrekventni limit:

$$G(z) = \int d\omega \frac{\rho(\omega)}{z - \omega} = \int d\omega \frac{\rho(\omega)}{z(1 - \frac{\omega}{z})} = \sum \frac{\mu_n}{z^{n+1}}, \quad (\text{B.0.4})$$

gde μ_n predstavlja spektralni moment: $\mu_n = \int d\omega \rho(\omega) \omega^n$.

Može se pokazati, polazeći od Hajzenbergove jednačine kretanja da je:

$$\mu_n = \langle \{F^n d_{k\sigma}, d_{k\sigma}^\dagger\} \rangle \quad (\text{B.0.5})$$

gde je $F d_{k\sigma} = [d_{k\sigma}, K]$, $K = H - \mu N$, pri čemu je H Hubbard-ov Hamiltonijan (2.1.1). Za

našu aproksimaciju biće nam dovoljna prva tri momenta:

$$\begin{aligned}\mu_0 &= 1 \\ \mu_1 &= \langle \{[d_{k\sigma}, K], d_{k\sigma}^\dagger\} \rangle = (\epsilon_k - \mu) + Un_{k\sigma} \\ \mu_2 &= \langle \{[[d_{k\sigma}, K], K], d^\dagger\} \rangle = (\epsilon - \mu)^2 + 2Un(\epsilon - \mu) + U^2n\end{aligned}\tag{B.0.6}$$

Green-ova funkcija se zatim može prikazati u obliku neprekidnih frakcija kao:

$$G(k, i\omega) = \frac{\alpha_1}{i\omega + \frac{\alpha_2}{1 + \frac{\alpha_3}{i\omega_n + \dots}}} = \frac{\alpha_1}{i\omega + \alpha_2 - \frac{\alpha_2\alpha_3}{i\omega}}\tag{B.0.7}$$

Nakon nekoliko transformacija dobijamo:

$$\begin{aligned}G(k, z) &= \frac{\alpha_1}{z + \frac{\alpha_2}{1 + \frac{\alpha_3}{z + \dots}}} = \frac{\alpha_1}{z + \alpha_2(1 - \frac{\alpha_3}{z} + (\frac{\alpha_3}{z})^2 + \dots)} \\ &= \frac{\alpha_1}{z} \left(1 - \frac{\alpha_2}{z} + \frac{\alpha_2\alpha_3 + \alpha_2^2}{z^2} + \dots\right) = \frac{\mu_0}{z} + \frac{\mu_1}{z^2} + \frac{\mu_2}{z^3}\end{aligned}\tag{B.0.8}$$

Tako da konačno dobijamo tražene parametre:

$$\begin{aligned}\alpha_1 &= \mu_0 = 1 \\ \alpha_2 &= -\mu_1 = -((\epsilon - \mu) + Un) \\ \alpha_3 &= \frac{\mu_2 - \mu_1^2}{-\mu_1} = -U^2n(1 - n)\end{aligned}\tag{B.0.9}$$

Zamenom parametara u B.0.7 i poređenjem sa opštim oblikom Green-ove funkcije rešetke 2.1.3, za self energiju dobijamo:

$$\Sigma(i\omega_n) = Un + U^2n(1 - n) \frac{1}{i\omega} + O((\frac{1}{i\omega})^2)\tag{B.0.10}$$

Konačno, zamenom visokofrekventnog limita $\Sigma_0^{(2)}$ (B.0.2) u ansatz i poređenjem sa prethodno dobijenim izrazom sopstvene energije B.0.10, određuje se konstanta A:

$$\begin{aligned}\Sigma(i\omega_n) &= Un + U^2n_0(1 - n_0) \frac{A}{i\omega} = Un + U^2n(1 - n) \frac{1}{i\omega} \\ A &= \frac{n(1 - n)}{n_0(1 - n_0)}\end{aligned}\tag{B.0.11}$$

Računanje konstante B

Parametar B je odabran tako da daje korektnu sopstvenu energiju u atomskom limitu. Kako su već izračunate i sopstvena enerija $\Sigma_{atom}(i\omega)$ (jednačina A.0.8), i $\Sigma_{0atom}^{(2)}(i\omega_n)$ (jednačina B.0.3), direktno će biti zamenjeni u ansatz.

$$Un + \frac{\frac{n(1-n)}{n_0(1-n_0)} \Sigma_0^{(2)}(i\omega_n)}{1 - B\Sigma_0^{(2)}(i\omega_n)} = Un + \frac{n(1-n)U^2}{i\omega + \mu - (1-n)U}\tag{B.0.12}$$

odakle se dobija i vrednost konstante B:

$$B = \frac{(1 - n)U + \mu_0 - \mu}{n_0(1 - n_0)U^2}\tag{B.0.13}$$

Dodatak C

Računanje broja popunjenoosti n

Jedan od važnih koraka pri realizaciji Iterativne perturbacione teorije je računanje broja popunjenoosti rešetke $n = G(\tau = 0^-)$. Furije transformom se može preći na osu u imaginarnom vremenu i time odrediti vrednost broja n:

$$n = \frac{1}{\beta} \sum_n e^{-i\omega_n 0^-} G(i\omega_n) \quad (\text{C.0.1})$$

Ono što predstavlja problem je kako numerički tretirati ovaj izraz. Green-ova funkcija ima zavisnost kao $\frac{1}{i\omega_n}$ i suma sporo konvergira. Da bi se izbeglo, memorisanje takvih članova poslužićemo se trikom, u kome ćemo dodati se i oduzeti član $\frac{1}{i\omega_n}$ od Green-ove funkcije. [23] Takođe, ukoliko se iskoriste osobine Green-ove funkcije $G(-i\omega_n) = G^*(i\omega_n)$ račun se pojednostavljuje činjenicom da je realni deo parna $\Re G(i\omega_n) = \Re G(-i\omega_n)$, a imaginarni deo Green-ove funkcije neparna funkcija $\Im G(i\omega_n) = -\Im G(-i\omega_n)$. Time se dobija sledeće:

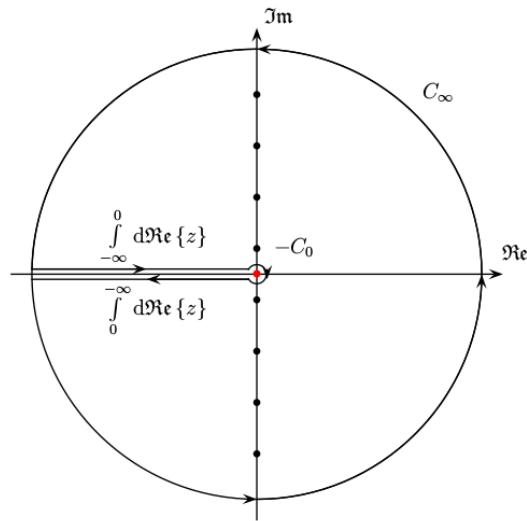
$$\begin{aligned} n &= \frac{1}{\beta} \sum_n e^{-i\omega_n 0^-} \left(G(i\omega_n) - \frac{1}{i\omega_n} \right) + \frac{1}{\beta} \sum_n e^{-i\omega_n 0^-} \frac{1}{i\omega_n} \\ &= \frac{1}{\beta} \sum_n (\cos(-\omega_n 0^-) + i \sin(-\omega_n 0^-)) \left(G(i\omega_n) - \frac{1}{i\omega_n} \right) + \frac{1}{\beta} \sum_n e^{-i\omega_n 0^-} \frac{1}{i\omega_n} \\ &= \frac{2}{\beta} \sum_{n \geq 0} \Re G(i\omega_n) + \underbrace{\frac{1}{\beta} \sum_n e^{-i\omega_n 0^-} \frac{1}{i\omega_n}}_{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (\text{C.0.2})$$

U prvom članu je sumirano samo po pozitivnim frekvencama i kako je uklonjen visokofrekventni rep Green-ove funkcije imaginarni delovi će se poništiti. Drugi član je konačan i korišćenjem Košijeve integralne formule se može pokazati da je jednak $\frac{1}{2}$.

$$\frac{1}{\beta} \sum_n \frac{1}{i\omega_n} e^{-i\omega_n \tau} = \int \frac{dz}{2\pi i} \begin{cases} f(-z) \frac{1}{z} e^{-z\tau}, & 0 < \tau < \beta. \\ -f(z) \frac{1}{z} e^{-z\tau}, & -\beta < \tau < 0. \end{cases} \quad (\text{C.0.3})$$

Kako nas interesuje drugi slučaj za $\tau < 0$, izračunaćemo samo njega, pri čemu će se prvi rezultat razlikovati do na znak. Ako dalje parametrizijumo jednačinu u kompleksnoj ravni kao $z = r(\cos(\omega) + i \sin(\omega))$, dok je η mali parametar koji tezi 0. Integral po celoj konturi je jednak zbiru integrala po konturama C , poluprečnika R i C_0 , poluprečnika r (slika C.1). U limitu $R \rightarrow \infty$ i $r \rightarrow 0$, integral će imati doprinos samo od konture manjeg poluprečnika.

$$\begin{aligned}
 \int -\frac{dz}{2\pi i} f(z) \frac{1}{z} e^{-z\eta} &= \frac{-1}{2\pi i} \lim_{r \rightarrow 0} \int_{\pi}^{-\pi} \frac{i e^{\eta r(\cos(\omega) + i \sin(\omega))}}{1 + e^{\beta r(\cos(\omega) + i \sin(\omega))}} d\omega \\
 &= \frac{-1}{2\pi i} \int_{\pi}^{-\pi} \frac{i}{1 + 1} = +\frac{1}{2}
 \end{aligned} \tag{C.0.4}$$



Slika C.1: Odabir konture za izračunavanje kompleksnog integrala

Dodatak D

Računanje energije

Da bi se numerički izračunala energija sistema $E(T) = \frac{1}{\beta} \frac{1}{N} \sum_{n,k} (i\omega_n + \epsilon_k + \mu) G_k(i\omega_n) e^{-i\omega_n 0^-}$, na Matsubara osi, potrebno je na sličan način kao u dodatku C transformisati dati izraz. Zamenom $G_k(i\omega_n)$ energija postaje:

$$E(T) = \frac{1}{\beta} \frac{1}{N} \sum_{n,k} e^{-i\omega_n 0^-} + \frac{1}{\beta} \frac{1}{N} \sum_{n,k} (2\epsilon_k) G_k(i\omega_n) e^{-i\omega_n 0^-} + \frac{1}{\beta} \frac{1}{N} \sum_{n,k} \Sigma(i\omega_n) G_k(i\omega_n) e^{-i\omega_n 0^-} \quad (\text{D.0.1})$$

Prvi član je jednak nuli [17]:

$$\sum_n e^{-i\omega_n 0^-} = \sum_{n \geq 0} e^{-i\omega_n 0^-} + \sum_{n \geq 0} e^{i\omega_n 0^-} = \sum_{n \geq 0} 2i \sin(i\omega_n 0^-) = 0 \quad (\text{D.0.2})$$

U drugom članu, situacija je ista kao kod broja popunjenošti. Visoko frekventni limit Green-ove funkcije je $\frac{1}{i\omega_n}$, dok treći član konvergira kao $\Sigma(i\omega_n)G(i\omega_n) \rightarrow (Un + U^2 \frac{n(n-1)}{i\omega_n}) \frac{1}{i\omega_n} \approx \frac{Un}{i\omega_n}$. Dakle, visokofrekventni izrazi će biti dodati i oduzeti.

$$E(T) = \frac{1}{\beta} \frac{1}{N} \sum_{n,k} 2\epsilon_k (G_k(i\omega_n) - \frac{1}{i\omega_n}) e^{-i\omega_n 0^-} + \frac{1}{\beta} \frac{1}{N} \sum_{n,k} \frac{2\epsilon_k}{i\omega_n} e^{-i\omega_n 0^-} + \frac{1}{\beta} \sum_n (G(i\omega_n) \Sigma(i\omega_n) - \frac{Un}{i\omega_n}) e^{-i\omega_n 0^-} + \frac{1}{\beta} \sum_n \frac{Un}{i\omega_n} e^{-i\omega_n 0^-} \quad (\text{D.0.3})$$

Na kraju se umesto sume po k, prelazi na integral po energijama, gde je $\rho(\epsilon)$ neinteragujuća gustina stanja rešetke:

$$E(T) = \frac{2}{\beta} \sum_{n \geq 0} \int d\epsilon \rho(\epsilon) \Re\left(\frac{2\epsilon}{i\omega_n - \epsilon + \mu - \Sigma(i\omega_n)} - \frac{1}{\beta\omega_n}\right) + \int d\epsilon \rho(\epsilon) \epsilon \quad (\text{D.0.4})$$

$$+ \frac{2}{\beta} \sum_{n \geq 0} \Re(G(i\omega_n) \Sigma(i\omega_n) - \frac{Un}{i\omega_n}) + \frac{Un}{2} \quad (\text{D.0.5})$$

Dodatak E

Kubo formula za optičku provodnost

Izvođenjem Kubo formule za optičku provodnost, pokazaćemo da ona optička provodnost može biti izražena preko korelacione funkcije struje j . [2] Neka je dat sistem opisan Hamiltonijanom H i neka je na njega primenjeno spoljašnje polje opisano Hamiltonijanom H_{ext} , koji je i vremenski zavistan. Tako da Sredingerova jednačina zavisi samo od spoljašnjeg polja koje deluje na sistem: $i\frac{\partial}{\partial t}|\psi_H(t)\rangle = H_{ext}(t)|\psi_H(t)\rangle$

Integraljenjem jednačine dobijamo stanje sistema u trenutku t , pri čemu smatramo da se početno stanje sistema nalazi u osnovnom stanju daleko u beskonačnosti.

$$|\psi_H(t)\rangle = |\psi_H(0)\rangle - i \int_{-\infty}^t dt' H_{ext}(t')|\psi_H(t)\rangle \quad (\text{E.0.1})$$

S druge strane, definišimo očekivanu vrednost operatora j u stanju $|\psi_H(t)\rangle$

$$O(r, t) = \langle \psi_H(t) | o(t) | \psi_H(t) \rangle = \langle o(t) \rangle - i \int_{-\infty}^t dt' \langle [o(t, r), H_{ext}(t')] \rangle \quad (\text{E.0.2})$$

Takođe u reprezentaciji druge kvantizacije, operator struje i hamiltonijan primjenjenog polja su:

$$j(r, t) = -\frac{e}{2m} \sum_{\sigma} \int dr \psi_{\sigma}^{\dagger} (\nabla - eA(r)) \psi_{\sigma}(r) \quad (\text{E.0.3})$$

$$H_{ext} = -\frac{e^2}{2m} \sum_{\sigma} \int dr \psi_{\sigma}^{\dagger} \nabla \psi_{\sigma}(r) A(r) \quad (\text{E.0.4})$$

Sve što je do sada uvedeno, je kako bi se našla očekivana vrednost operatora J .

$$J = \langle j \rangle - i \int_{-\infty}^t dt' \langle [j(t, r), H_{ext}(t')] \rangle \quad (\text{E.0.5})$$

U ovom izrazu, zadržavamo samo linearne članove po vektorskom potencijalu,

$$J = \int dt' dr' \Pi(r, r', t - t') A(r', t') - \frac{e^2}{m} n(r) A(r) \quad (\text{E.0.6})$$

i uvodimo korelacionu funkciju $\Pi(r, r') = \theta(t - t') \langle [j(r), j(r')] \rangle$. Operator struje j se deli na dva dela, paramagnetni i dijamagnetni odgovor sistema, a pri određivanju optičke provodnosti zanimaće nas samo paramagnetni član.

Kako je $E(r, t) = -\frac{\partial}{\partial t} [A(r, \omega) e^{-i\omega t}] = i\omega A(r, \omega) e^{-i\omega t}$, odnosno $E(r, \omega) = i\omega A(r, \omega)$, dobija se konačan izraz u kome prepoznajemo optičku provodnost ($\vec{j} = \sigma \vec{E}$)

$$J(r, \omega) = -\frac{1}{i\omega} \left[\int dr' \Pi(r, \omega, t - t') E(r', \omega) - \frac{e^2}{m} n(r) E(r, \omega) \right] \quad (\text{E.0.7})$$

Na kraju se prostornim Furije transformmom dobija izraz za optičku provodnost, odnosno Kubo formula, koja je iskorišćena kao polazna tačka u određivanju optičke provodnosti na rešetki.

$$\sigma(q, \omega) = \frac{1}{i\omega} \left[\Pi(q, \omega) - \frac{ne^2}{m} \right] \quad (\text{E.0.8})$$

Literatura

- [1] G. Kotliar and D. Vollhardt, “Strongly correlated materials: Insights from dynamical mean-field theory,” *Physics Today*, vol. 57, 2004.
- [2] P. Coleman, *Introduction to Many-Body Physics*. Cambridge University Press, 2015.
- [3] “The hubbard model at half a century,” *Nat Phys*, vol. 9, pp. 523–523, Sep 2013.
- [4] D. Vollhardt, G. Kotliar, A. Georges, A. Lichtenstein, T. Wehling, E. Pavarini, F. Assaad, E. Koch, M. Potthoff, K. Held, W. Metzner, M. Kollar, J. Minar, M. Sing, and H. Tjeng, *DMFT at 25: Infinite Dimensions*. 09 2014.
- [5] A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. J. Rozenberg, “Dynamical mean-field theory of strongly correlated fermion systems and the limit of infinite dimensions,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 68, pp. 13–125, Jan 1996.
- [6] A. Georges, “Strongly correlated electron materials: Dynamical mean-field theory and electronic structure,” *AIP Conference Proceedings*, vol. 715, no. 1, pp. 3–74, 2004.
- [7] J. Vučićević, *Signatures of Hidden Quantum Criticality in the High-temperature Charge Transport Near the Mott Transition*. PhD thesis, 2015.
- [8] V. Dobrosavljević and D. Tanasković, ch. Chapter 1. Wigner Mott Quantum Criticality: From 2D-MIT to 3He and Mott Organics, pp. 1–46. Pan Stanford Publishing Pte. Ltd., Nov 2016.
- [9] M. Potthoff, T. Wegner, and W. Nolting, “Interpolating self-energy of the infinite-dimensional hubbard model: Modifying the iterative perturbation theory,” *Phys. Rev. B*, vol. 55, pp. 16132–16142, Jun 1997.
- [10] H. Kajueter and G. Kotliar, “New iterative perturbation scheme for lattice models with arbitrary filling,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 77, pp. 131–134, Jul 1996.
- [11] L.-F. m. c. Arsenault, P. Sémond, and A.-M. S. Tremblay, “Benchmark of a modified iterated perturbation theory approach on the fcc lattice at strong coupling,” *Phys. Rev. B*, vol. 86, p. 085133, Aug 2012.
- [12] O. Parcollet, M. Ferrero, T. Ayral, H. Hafermann, I. Krivenko, L. Messio, and P. Seth, “Triqs: A toolbox for research on interacting quantum systems,” *Computer Physics Communications*, vol. 196, no. Supplement C, pp. 398 – 415, 2015.

- [13] E. Gull, *Continuous-Time Quantum Monte Carlo Algorithms for Fermions*. PhD thesis, 2008.
- [14] A. Lichtenstein and H. Hafermann, “Non-local correlation effects in solids: Beyond DMFT,” pp. 11.1–11.29, 2011.
- [15] H. T. Dang, X. Y. Xu, K.-S. Chen, Z. Y. Meng, and S. Wessel, “Mott transition in the triangular lattice hubbard model: A dynamical cluster approximation study,” *Phys. Rev. B*, vol. 91, p. 155101, Apr 2015.
- [16] J. Vucicevic, *Influence of particle hole asymmetry on the properties of the Mott metal insulator transition*. diploma thesis, 2009.
- [17] A. Fetter and J. Dirk Walecka, *Quantum Theory of Many-Particle System*, vol. 25. Dover Publications, 01 2003.
- [18] K. Haule, *Diagrammatic theory of strongly correlated electron systems*. PhD thesis, 2002.
- [19] J. Kokalj and R. H. McKenzie, “Thermodynamics of a bad metal–mott insulator transition in the presence of frustration,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, p. 206402, May 2013.
- [20] T. Pruschke, D. L. Cox, and M. Jarrell, “Hubbard model at infinite dimensions: Thermodynamic and transport properties,” *Phys. Rev. B*, vol. 47, pp. 3553–3565, Feb 1993.
- [21] N. Blumer, *Mott-Hubbard Metal-Insulator Transition and Optical Conductivity in High Dimensions*. PhD thesis, 2003.
- [22] A.-M. Tremblay, *The Many-Body problem, from perturbation theory to dynamical-mean field theory (lecture notes)*. 2017.
- [23] A. Abrikosov, *Methods of Quantum Field Theory in Statistical Physics*. Prentice Hall, 1963.