

# Korrelierte Elektronen im Festkörper

Die Dynamische Mean-Field-Theorie liefert ein tieferes Verständnis elektronischer Korrelationen.

Dieter Vollhardt

Regelmäßig angeordnete Atome, ihre Elektronen, die Coulomb-Wechselwirkung und die Gesetze der Quantenmechanik: Aus diesen Zutaten entsteht das äußerst reichhaltige Spektrum an Phänomenen, das sich in Festkörpern beobachten lässt. So verwandelt sich beispielsweise Vanadiumoxid beim Abkühlen schlagartig von einem guten elektrischen Leiter zum Isolator, während die Hochtemperatur-Supraleiter bei anderen äußeren Bedingungen abrupt den entgegengesetzten Weg gehen. Bei diesen und vielen anderen Phänomenen spielen elektronische Korrelationen eine entscheidende Rolle. Fortschritte in der Theorie erlauben es seit einigen Jahren, Korrelationen korrekt zu berücksichtigen und damit die Eigenschaften elektronisch korrelierter Materialien besser zu verstehen.

Der Begriff der Korrelation (von lat.: con + relatio) tritt nicht nur in den Naturwissenschaften und der Mathematik auf, sondern spielt auch im menschlichen Alltag eine bedeutende Rolle. So sind Personen in einem Aufzug oder Auto sowohl räumlich als auch zeitlich stark korreliert (wenngleich die Stärke der Wechselwirkung dabei eher subjektiv empfunden wird). In der Physik wird im Allgemeinen dann von Korrelation gesprochen, wenn der Mittelwert eines Produkts von Größen nicht dem Produkt der Mittelwerte der Einzelgrößen entspricht. Zum Beispiel ist die Dichte-Dichte-Korrelationsfunktion eines Vielteilchensystems nicht einfach das Produkt der mittleren Dichten, da sich die Teilchendichten an verschiedenen Orten beeinflussen.

Wie bei zwei Personen, die zusammen in einem engen Aufzug fahren, sind auch zwei Elektronen mit unterschiedlicher Spinrichtung dann korreliert, wenn sie ein enges d- oder f-Orbital besetzen. Das ist bei vielen Elementen und ihren Verbindungen der Fall, z. B. in den Übergangsmetallen Vanadium, Eisen und Nickel, den Seltenerdmetallen wie dem Cer oder den Aktiniden wie dem Uran. Die räumliche Beschränkung verstärkt den Effekt der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen und führt dadurch zu einer Vielzahl von Ordnungszuständen der mikroskopischen Freiheitsgrade der Elektronen (Ladung, Spin, Bahndrehimpuls) und des Gitters [1]. In diesen Systemen können daher schon geringe Änderungen äußerer Parameter wie der Temperatur, des Druck, eines Magnetfelds oder der Dotierung zu starken Reaktionen



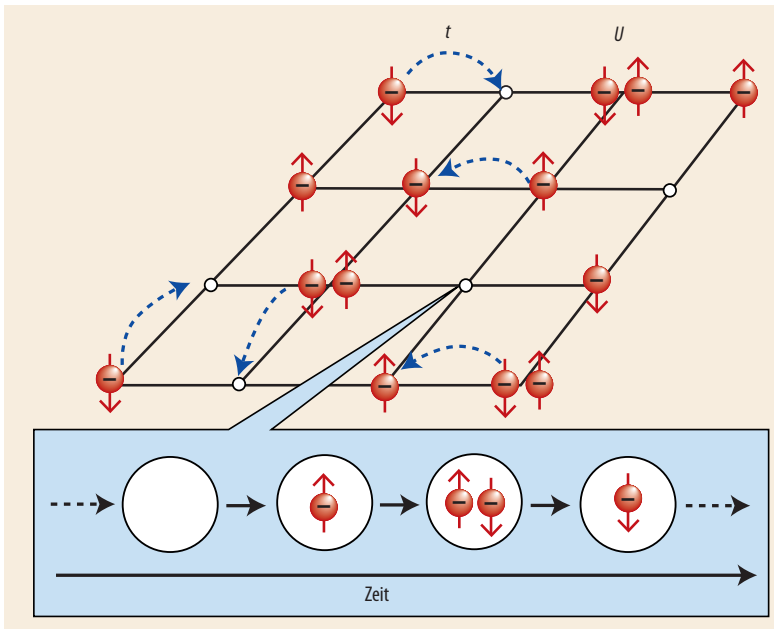
In einer Menschenmenge sind die einzelnen Personen hochkorreliert.

führen. Beispiele sind extrem große Widerstandsänderungen bei Metall-Isolator-Übergängen wie in  $V_2O_3$  oder eine abrupte Volumenänderung („Volumenkollaps“) in Cer. Auch die Hochtemperatur-Supraleitung in Kupratverbindungen ist ein Korrelationsphänomen. Diese besonderen Eigenschaften sind nicht nur für die Grundlagenforschung, sondern auch für zukünftige technologische Anwendungen von großem Interesse. Materialien mit korrelierten Elektronen spielen daher z. B. für den Bau von Sensoren und Schaltern und ganz allgemein für die Entwicklung neuartiger elektronischer Bauelemente eine große Rolle [2].

## KOMPAKT

- Elektronische Korrelationen sind Effekte der Wechselwirkung zwischen Elektronen im Festkörper, die über die Näherung dieser Wechselwirkung als statisches mittleres Feld („Mean Field“) hinausgehen.
- Die Dynamische Mean-Field-Theorie (DMFT) ist eine breit einsetzbare Näherungsmethode zur Untersuchung korrelierter Elektronen im Festkörper, die insbesondere die Dynamik der wechselwirkenden Teilchen korrekt beschreibt.
- Durch Kombination der DMFT mit herkömmlichen Methoden zur Berechnung elektronischer Bandstrukturen lassen sich auch die Eigenschaften realer korrelierter Materialien verstehen.

**Prof. Dr. Dieter Vollhardt**, Theoretische Physik III, Zentrum für Elektronische Korrelationen und Magnetismus, Universität Augsburg, 86135 Augsburg – Preisträgerartikel anlässlich der Verleihung der Max-Planck-Medaille 2010 auf der 74. Jahrestagung der DPG in Bonn.



**Abb. 1** Im Rahmen des Hubbard-Modells für wechselwirkende Elektronen in einem Festkörper treten die Ionen lediglich in Gestalt eines starren Gitters auf (hier zur Einfachheit ein Quadratgitter). Die Elektronen, die eine Masse, eine negative Ladung und einen Spin ( $\uparrow$  oder  $\downarrow$ ) besitzen, bewegen sich mit einer Hüpfamplitude  $t$  von einem Gitterplatz zum nächsten (gestrichelte Pfeile). Aufgrund des Pauli-Prinzips können höchstens

ein  $\uparrow$ -Elektron und ein  $\downarrow$ -Elektron auf demselben Gitterplatz sein. In diesem Falle kommt es zu einer abstoßenden Wechselwirkung der Stärke  $U$ . Ein Gitterplatz kann also entweder leer, einfach ( $\uparrow$  oder  $\downarrow$ ) oder doppelt besetzt sein. Die quantenmechanische Dynamik der Elektronen drückt sich durch Fluktuationen in der Besetzung der Gitterplätze aus, die in dem hellblauen Kasten als Momentaufnahmen dargestellt sind.

## Modellierung elektronisch korrelierter Systeme

In Elementen wie Silizium oder Aluminium sind die Elektronen nur schwach korreliert. Dann ist das Bändermodell – eine Theorie, die den Wellencharakter der Elektronen in den Vordergrund stellt – ein guter Ausgangspunkt für die Untersuchung derartiger Festkörper. Zudem steht mit Landaus Fermi-Flüssigkeitstheorie (dem „Standardmodell“ der Physik der kondensierten Materie) ein geeigneter konzeptioneller Rahmen für die Untersuchung fermionischer Vielteilchensysteme zur Verfügung. Diese Theorie beruht auf dem Begriff des Quasiteilchens – der elementaren Anregung eines wechselwirkenden fermionischen Systems –, das in Eins-zu-eins-Korrespondenz zu dem Teilchen in einem nichtwechselwirkenden System definiert ist. Des Weiteren erlaubt es die Dichtefunktionaltheorie [3] mit ihren verschiedenen Näherungen, die Gesamtenergie und die elektronische Bandstruktur eines Festkörpers häufig mit bemerkenswerter Genauigkeit *ab initio*, d. h. ausgehend von den Positionen und Ladungen der Atome, zu berechnen. Allerdings stellte sich schon früh heraus, dass sich dieser Zugang im Allgemeinen nicht für stark korrelierte Materialien eignet. Dies fiel besonders bei Isolatoren wie NiO auf, die nach der Bändertheorie metallisch sein müssten, obwohl sie eine große Energielücke an der Fermi-Energie aufweisen. Tatsächlich lassen sich diese Systeme besser in einem Ortsraumbild, d. h. als Gitter

lokalisierter Atome mit offenen Elektronenschalen, verstehen. Angeregte Zustände eines derartigen Isolators können sich nur inkohärent bewegen.

Jenseits dieser beiden Extremfälle – des auf dem Wellencharakter der Elektronen basierenden Bändermodells und der Ortsraumformulierung lokalisierter Elektronen – wird die theoretische Beschreibung viel komplizierter. Tatsächlich sind die Elektronen in vielen der oben genannten Übergangsmetalle, seltenen Erden und Aktiniden weder voll beweglich („itinerant“) noch voll lokalisiert. Dann ist eine Kombination der beiden Darstellungen erforderlich [4].

Stark korrelierte Materialien wurden in der Vergangenheit fast ausschließlich mithilfe effektiver Modelle untersucht, die nur die wichtigsten Freiheitsgrade in dem jeweils interessierenden Energiebereich berücksichtigen. Wie sich ein reales Vielteilchenproblem auf ein einfacheres, effektives Modell reduzieren lässt, das dennoch die wichtigsten physikalischen Phänomene des vollen Systems beschreiben kann, ist generell eine fundamentale Frage der theoretischen Physik.

## Das Hubbard-Modell

Das einfachste mikroskopische Modell zur Untersuchung korrelierter Elektronensysteme ist das Hubbard-Modell, das Martin Gutzwiller, John Hubbard und Junjiro Kanamori 1963 unabhängig voneinander eingeführt haben [5]. Die kinetische Energie des Modells beschreibt die Bewegung der Elektronen mit Spin  $\uparrow$  und  $\downarrow$  im Rahmen der sog. tight-binding-Näherung als ein Hüpfen mit Amplitude  $t$  von einem Gitterplatz zum nächsten (Abb. 1). Wegen des Pauli-Prinzips können sich zwei Elektronen nur dann auf demselben Gitterplatz aufhalten, wenn ihr Spin entgegengesetzt ist. Ein beliebig herausgegriffener Gitterplatz ist im Verlauf der Zeit somit entweder leer, einfach besetzt (mit einem  $\uparrow$ - oder  $\downarrow$ -Elektron) oder doppelt besetzt. Bei der Wechselwirkung wird vereinfachend angenommen, dass sie aufgrund der gegenseitigen Abschirmung rein lokal ist. Die Elektronen sollen die Coulomb-Abstoßung also nur dann spüren, wenn sich ein  $\uparrow$ - und ein  $\downarrow$ -Elektron auf demselben Gitterplatz befinden, womit dann die Wechselwirkungsenergie  $U$  verbunden ist.

Wegen seiner konzeptionellen Einfachheit nimmt das Hubbard-Modell eine zentrale Stellung in der Theorie wechselwirkender elektronischer Systeme ein. Es spielt damit eine ähnliche Rolle wie das Ising-Modell bei klassischen Spinsystemen. Trotz der bereits eingeflossenen Näherungen stellt das Hubbard-Modell immer noch ein hoch kompliziertes quantentheoretisches Vielteilchenproblem dar, da die typische Zahl der Elektronen in einem Festkörper von der Ordnung  $10^{23}$  ist. Zu den Modellparametern  $t$  und  $U$  kommen noch die Temperatur und die Elektronendichte als weitere Systemparameter sowie die Raumdimension und die Gitterstruktur. Aufgrund der quantenmechanischen Dynamik der Elektronen und des Pauli-Prinzips lässt sich das Hubbard-Modell im Allgemeinen nicht analy-

tisch lösen; eine Ausnahme ist der eindimensionale Fall, für den Elliott Lieb und Fa-Yueh Wu 1968 die exakte Lösung hergeleitet haben. Da bereits die Untersuchung dieses einfachsten elektronischen Wechselwirkungsmodells zu prinzipiellen theoretischen Problemen führt, sind weitere Approximationen nötig. Bei schwacher Wechselwirkung sind Einteilchen-Näherungen wie die Hartree-Fock-Theorie nützlich. Dabei werden die beiden auf einem Gitterplatz wechselwirkenden Elektronen voneinander entkoppelt. Ein  $\uparrow$ -Elektron sieht dann ein  $\downarrow$ -Elektron auf demselben Gitterplatz nur noch als statisches mittleres Feld. Bei stärkeren Wechselwirkungen, bei denen Doppelbesetzungen energetisch immer ungünstiger werden, ist diese Näherung allerdings völlig unzureichend. Daher können derartige Mean-Field-Theorien die Physik korrelierter Elektronen nicht erklären. Die theoretische Herausforderung besteht offenbar in der Konstruktion umfassender, d. h. für alle Eingabeparameter gültiger, zuverlässiger Näherungsmethoden für quantenmechanische Vielteilchensysteme.

In Anbetracht der prinzipiellen Beschränkungen analytischer Untersuchungsmethoden könnte man hoffen, dass zumindest numerische Lösungsmethoden sehr genaue Einblicke in die Eigenschaften des Hubbard-Modells ermöglichen. Da aber die Zahl der quantenmechanischen Zustände mit der Zahl der Gitterplätze  $L$  exponentiell ansteigt, muss sich die numerische Lösung des Hubbard-Modells und verwandter Modelle auf relative kleine Systeme von der Größenordnung  $L \sim 20$  beschränken. Das zeigt besonders eindringlich, wie wichtig analytisch basierte Näherungsverfahren für die Untersuchung derartiger Systeme sind.

## Mean-Field-Theorien für Vielteilchensysteme

Mean-Field-Theorien<sup>1)</sup> können häufig die Eigenschaften von Vielteilchensystemen bereits ungefähr beschreiben. Für ihre Herleitung gibt es keine verbindlichen Regeln. Allerdings besteht die Möglichkeit, eine solche Näherung dadurch herzuleiten, dass ein Systemparameter, z. B. die Größe des Spins  $S$ , die Höhe der Spinartung  $N$  oder die Zahl der nächsten Nachbarn eines Gitters (Koordinationszahl)  $Z$  künstlich erhöht und der Grenzwert untersucht wird, in dem dieser Parameter sogar *unendlich* groß ist (die Hartree-Fock-Näherung gehört nicht zur Klasse dieser Theorien). Das Vielteilchenproblem vereinfacht sich dann erheblich. Untersuchungen eines Systems in diesem Grenzfall können nützliche Einblicke in seine grundlegenden Eigenschaften liefern, selbst wenn der entsprechende Parameter in Wirklichkeit gar nicht sehr groß ist. Eine der bekanntesten Mean-Field-Näherungen ist die Weissische Molekularfeldtheorie für das Ising-Modell. Sie ist der Prototyp einer lokalen (engl.: single site) Mean-Field-Theorie. Das ursprüngliche Gittermodell reduziert sich dabei effektiv auf einen einzigen Gitterplatz, d. h. Spin, der in ein mittleres Feld eingebettet ist, das durch (unendlich) viele andere Spins gebildet wird. Der Mittelwert des Spins und die Stärke des mittleren

Feldes bestimmen sich gegenseitig, d. h. sie werden durch eine Selbstkonsistenz-Gleichung festgelegt – ein charakteristisches Merkmal von Mean-Field-Theorien. Die Weissische Molekularfeldtheorie wird im Grenzfall hoher Raumdimensionen ( $d \rightarrow \infty$ ) oder unendlich vieler nächster Nachbarn auf dem Gitter ( $Z \rightarrow \infty$ ) exakt<sup>2)</sup>, enthält keine unphysikalischen Singularitäten und lässt sich für alle Werte der Kopplung, des Magnetfelds oder der Temperatur anwenden.

## Dynamische Mean-Field-Theorie

Es stellt sich die Frage, ob der Grenzwert hoher Raumdimensionen  $d$  auch für die Untersuchung von Gittermodellen mit beweglichen quantenmechanischen Freiheitsgraden hilfreich sein kann. Walter Metzner und der Autor zeigten im Jahr 1989, dass sich für das Hubbard-Modell tatsächlich ein wohldefinierter Grenzwert  $d \rightarrow \infty$  definieren lässt, in dem sich vielteilchentheoretische Untersuchungen drastisch vereinfachen und trotzdem charakteristische Eigenschaften dreidimensionaler Systeme beschreiben lassen [6, 7]. So wie sich für das Ising-Modell die Weissische Mean-Field-Theorie ergibt, reduziert sich das Hubbard-Modell in diesem Grenzfall auf ein effektiv lokales Vielteilchenproblem. Vereinfachungen ergeben sich dabei nur in den räumlichen Abhängigkeiten, während die Dynamik, die für die Beschreibung der Korrelationen unverzichtbar ist, völlig erhalten bleibt. Das elektronische Vielteilchenproblem vereinfacht sich somit auf einen einzigen Gitterplatz, der in ein dynamisches mittleres Feld eingebettet ist (Abb. 2). Die Dynamik dieses Feldes gestattet es, dass Teilchen wie in dem ursprünglichen Modell lokal

- 1) Aus historischen Gründen werden diese oft Molekularfeld-Theorien genannt.
- 2) Die Koordinationszahl  $Z$  wird durch die Raumdimension  $d$  und die Gitterstruktur festgelegt. Für ein hyperkubisches Gitter, das man durch die Verallgemeinerung eines einfachkubischen Gitters in  $d=3$  auf beliebige Dimensionen  $d$  erhält, gilt  $Z=2d$ . Der Grenzwert  $d \rightarrow \infty$  ist dann gleichbedeutend mit  $Z \rightarrow \infty$ . Allerdings ist die Raumdimension  $d$  die allgemeinere physikalische Größe, da  $Z$  nur die lokale Struktur des Gitters charakterisiert. Im Folgenden wird daher meistens von dem Grenzwert  $d \rightarrow \infty$  gesprochen.

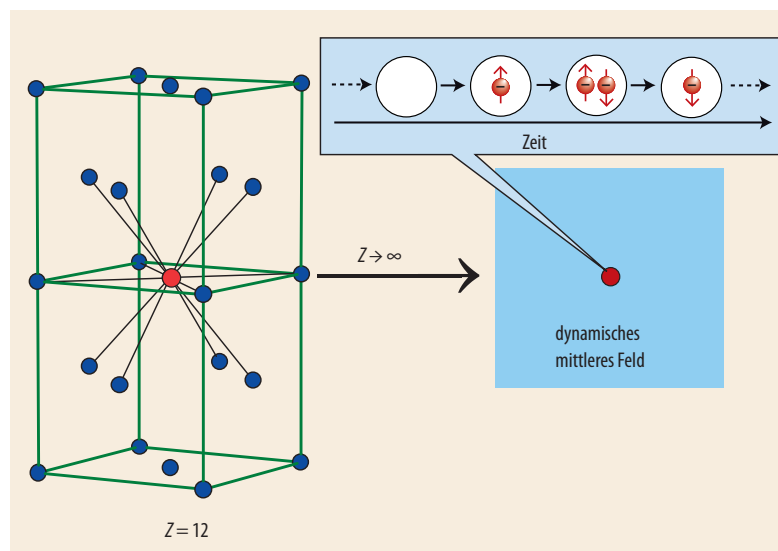


Abb. 2 Schon in einem dreidimensionalen Ionengitter kann die Koordinationszahl  $Z$ , d. h. die Zahl der nächsten Nachbarn eines Gitterplatzes, recht hoch sein wie hier in einem kubisch-flächenzentrierten Gitter mit  $Z = 12$ . Im hypothetischen Limes  $d \rightarrow \infty$ , d. h.  $Z \rightarrow \infty$  (siehe Fußnote 2), reduziert sich das Vielteilchenproblem auf einen einzigen Gitter-

platz, der in ein dynamisches mittleres Feld eingebettet ist. Elektronen können auf den gezeigten Gitterplatz hüpfen und dort wie in dem ursprünglichen Modell (Abb. 1) wechselwirken. Diese Näherung beschreibt die quantenmechanische Dynamik der wechselwirkenden Elektronen korrekt.

miteinander wechselwirken und Energie austauschen können. Hier besteht der Unterschied zu Hartree-Fock-Theorien, die auf der Entkopplung der Wechselwirkung beruhen und in denen das mittlere Feld lediglich als statisches Potential auftritt. Man hat es hier daher mit einer „dynamischen Mean-Field-Theorie“ (DMFT) für korrelierte Fermionen auf einem Gitter zu tun. Aufgrund dieser Dynamik ergeben sich in der DMFT unendlich viele Selbstkonsistenzgleichungen. Sie lassen sich auf unterschiedliche Weise ableiten. In dem von Vaclav Janiš eingeführten Zugang werden die wechselwirkenden Elektronen als *nicht*wechselwirkende Teilchen in Gegenwart fluktuierender Felder behandelt; man hat es dann mit einem verallgemeinerten Unordnungsproblem zu tun [8]. Antoine Georges und Gabriel Kotliar haben das Hubbard-Modell im Grenzwert  $d \rightarrow \infty$  dagegen auf ein quantenmechanisches Störstellenproblem (engl.: single-impurity Anderson model) zurückgeführt, das selbstkonsistent an das dynamische mittlere Feld angekoppelt ist [9]. Bei dem letztgenannten Zugang, den auch Mark Jarrell gewählt hat [10], hat man es mit einem physikalisch gut verstandenen Vielteilchenmodell zu tun, für das schon damals erprobte numerische Lösungsmethoden wie die Quanten-Monte-Carlo-Technik zur Verfügung standen, die inzwischen um verschiedene andere Verfahren, z. B. die numerische Renormierungsgruppe, erweitert wurden [10]. Aus diesem Grund ist es heute üblich, die DMFT als quantenmechanisches Störstellenproblem mit zusätzlicher Selbstkonsistenzbedingung für das umgebende mittlere Feld zu interpretieren [11].

Aufgrund der wesentlichen rechentechnischen Erleichterungen, die der Grenzwert  $d \rightarrow \infty$  mit sich bringt, wurde der Nutzen der DMFT schnell erkannt. Als nicht-störungstheoretisches, thermodynamisch konsistentes Näherungsschema für endlich-dimensionale Systeme hat sich die DMFT daher zu der standardmäßig angewandten Mean-Field-Theorie für korrelierte fermionische Systeme auf dem Gitter entwickelt [11].

## Metall-Isolator-Übergänge

Gerade bei den Übergangsmetalloxiden gibt es zahlreiche Verbindungen mit teilweise gefüllten Elektronenbändern, die bei tiefen Temperaturen Isolatorverhalten zeigen, obwohl sie nach dem Bändermodell gute Metalle sein sollten. Eines der bekanntesten Beispiele ist  $V_2O_3$ , bei dem die Veränderung äußerer Parameter wie der Dotierung, des Drucks oder der Temperatur einen abrupten Übergang von metallischem zu isolierendem Verhalten und umgekehrt induzieren kann. Der elektrische Widerstand ändert sich dabei um viele Größenordnungen. Bereits 1949 gab Nevill Mott physikalische Gründe dafür an, warum gerade die Wechselwirkung zwischen den Elektronen zu einem derartigen Verhalten führen könnte. Das Hubbard-Modell eignet sich besonders für eine mikroskopische Untersuchung dieses Metall-Isolator-Übergangs, da es metallisches und Isolatorverhalten bereits als prinzipielle Grenzfälle

enthält. In der folgenden Diskussion beschränken wir uns auf den Fall der Temperatur  $T=0$  und die paramagnetische Phase. Bei schwacher Wechselwirkung dominiert die kinetische Energie – ein Effekt, der sich am einfachsten im Wellenbild der Elektronen erklären lässt –, und das System ist daher ein Metall. Bei starker Wechselwirkung und halber Bandfüllung (d. h. wenn es gleich viele Elektronen wie Gitterplätze gibt, wobei auch die Zahl der  $\uparrow$ - und  $\downarrow$ -Elektronen gleich sein soll) sind die Elektronen dagegen im Wesentlichen einzeln auf den Gitterplätzen lokalisiert. Dann kann kein elektronischer Strom fließen, und das System ist ein Isolator. Dieser Zustand wird am besten durch Elektronen als Teilchen im Ortsraum beschrieben. Bei einer bestimmten kritischen Wechselwirkungsstärke ist dann ein scharfer Übergang zwischen metallischem und isolierendem Verhalten zu erwarten. Dieser korrelationsinduzierte Übergang zwischen einem paramagnetischen Metall und einem paramagnetischen Isolator wird als Mott-Hubbard-Metall-Isolator-Übergang oder einfacher Mott-Hubbard-Übergang bezeichnet und ist eines der faszinierendsten Vielteilchenphänomene der Physik der kondensierten Materie. Dabei handelt es sich offenbar um einen Lokalisierungs-Delokalisierungs-Übergang, der die Welle-Teilchen-Dualität der Elektronen eindrucksvoll demonstriert. Bis vor wenigen Jahren konnten mikroskopische Theorien des Mott-Hubbard-Übergangs jeweils nur Teilaspekte des Problems erklären. So führt Hubbards Näherung zwar zu einer kontinuierlichen Aufspaltung des Energiebands in unteres und oberes Hubbard-Band, kann aber nicht das Quasiteilchenverhalten in der Nähe der Fermi-Energie erklären [5]. Dagegen beschreibt der von William Brinkman und Maurice Rice entwickelte, auf den Vorarbeiten von Gutzwiller basierende Zugang [12] die Quasiteilchen gut, nicht aber die Hubbard-Bänder. Bei der Untersuchung dieses grundlegenden Korrelationsproblems der Festkörperphysik hat die DMFT ein tieferes Verständnis geliefert, da sie es gestattet, den Mott-Hubbard-Übergang für alle Parameterwerte nicht-störungstheoretisch zu untersuchen.

## Die Zustandsdichte der Anregungen

Die DMFT erlaubt es insbesondere, die Dichte der Anregungen des Vielteilchensystems auf einem Gitterplatz („lokale Zustandsdichte“) direkt zu berechnen. Diese Spektralfunktion zeigt in Abhängigkeit der Wechselwirkungsstärke  $U$  ein sehr charakteristisches Verhalten (Abb. 3). Bei kleinen Werten von  $U$  sind die Elektronen (genauer gesagt die Quasiteilchen) beweglich, und die Spektralfunktion ähnelt der lokalen Zustandsdichte, wie sie die Bändertheorie vorhersagt. Bei großen Werten von  $U$ , wenn die Elektronen also im Wesentlichen lokalisiert sind und das System ein Mott-Isolator ist, besteht die Spektralfunktion dagegen aus zwei mehr oder minder scharfen, getrennten Maxima, die dem chemischen Potential des einfach bzw. doppelt besetzten Orbitals entsprechen und die

daher um die Wechselwirkungsenergie  $U$  verschoben sind; ihre Verbreiterung wird durch die Hüpfprozesse der Elektronen verursacht. Wie ändert sich nun die Spektralfunktion zwischen diesen wohlverstandenen Grenzfällen? Mithilfe der DMFT gelang es zu zeigen, dass diese Größe bei mittleren Werten von  $U$  Eigenschaften beider Grenzfälle aufweist [11]. Es entsteht nämlich eine Struktur mit drei Maxima, die sowohl die atomaren Aspekte (Hubbard-Bänder) als auch die niederenergetischen Anregungen nahe der Fermi-Energie (Quasiteilchenmaximum) beschreibt (Abb. 3). Der Mott-Hubbard-Übergang entsteht somit dadurch, dass aufgrund der Korrelationen spektrales Gewicht von dem Quasiteilchenmaximum an der Fermi-Energie in die energetisch entfernten Hubbard-Bänder verlagert wird. DMFT-Untersuchungen bei endlichen Temperaturen ergaben, dass der Mott-Hubbard-Übergang unterhalb einer kritischen Temperatur von erster Ordnung ist, d. h. diskontinuierlich abläuft, und deshalb zwischen Metall und Isolator eine Hysterese auftritt [11].

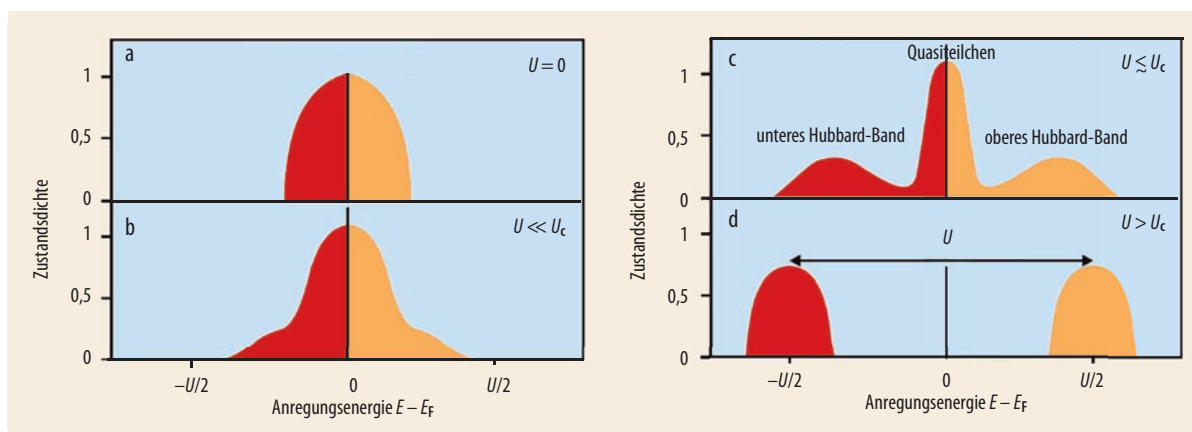
Die Drei-Maxima-Struktur der Spektralfunktion ist eine charakteristische Eigenschaft des Hubbard-Modells mit einem halbgefüllten Energieband und hängt nicht von den Einzelheiten der Bandstruktur bzw. Zustandsdichte der nichtwechselwirkenden Elektronen ab. Nun stellt sich die Frage, inwieweit dieses theoretische Ergebnis tatsächlich die Realität beschreibt, d. h. ob sich diese Struktur auch experimentell beobachten lässt.

## Elektronische Korrelationen in realen Materialien

Das Hubbard-Modell kann zahlreiche allgemeine Eigenschaften korrelierter elektronischer Systeme erklären, nicht aber spezifische Merkmale realer Festkörper. Dazu müssen die elektronische Struktur und die Gitterstruktur des jeweiligen Festkörpers berücksichtigt werden. Hier hat sich die Dichtefunktionaltheorie [3] und insbesondere ihre Lokale-Dichte-Näherung (engl.:

local density approximation, LDA) als außerordentlich erfolgreich erwiesen. Sie entwickelte sich somit während der letzten zwanzig Jahre zu der wichtigsten materialspezifischen Untersuchungsmethode der theoretischen Festkörperphysik. Allerdings eignen sich die verfügbaren Näherungen der Dichtefunktionaltheorie nicht für die Beschreibung stark korrelierter Materialien, da sie die Dynamik der Elektronen mit starken kurzreichweitigen Wechselwirkungen nicht beschreiben können. Derartige Vielteilcheneffekte lassen sich zwar systematisch theoretisch untersuchen – aber nur mithilfe einfacher, effektiver Modelle wie dem Hubbard-Modell. Insgesamt verhindern die kleine Zahl von Modellparametern und die Komplexität des Korrelationsproblems dabei eine Anwendung auf reale Systeme.

Vor einigen Jahren hat es die DMFT ermöglicht, diese beiden komplementären Methoden in einen gemeinsamen *ab initio*-Zugang zu kombinieren, um reale, korrelierte Materialien zu untersuchen. In dieser häufig mit LDA+DMFT bezeichneten Theorie wird die spezifische elektronische Struktur eines Materials mithilfe der LDA oder anderer Dichtefunktional-Näherungen berechnet und durch die lokalen elektronischen Wechselwirkungen, die in dem ersten Schritt nur unzureichend berücksichtigt wurden, ergänzt [13]. Das so konstruierte Vielteilchenmodell besteht wie das Hubbard-Modell aus zwei Anteilen – einer kinetischen Energie, die nun die spezifische Bandstruktur der unkorrelierten Elektronen beschreibt, sowie den lokalen Wechselwirkungen zwischen Elektronen in demselben Orbital und in verschiedenen Orbitalen.<sup>3)</sup> Das so entstandene komplizierte Vielteilchenproblem mit seinen zahlreichen Elektronenbändern und lokalen Wechselwirkungen wird dann im Rahmen der DMFT numerisch gelöst. Der LDA+DMFT-Zugang reproduziert somit nicht nur die LDA-Ergebnisse im Limes schwacher Wechselwirkungen, sondern kann auch die dynamischen Korrelationseffekte in dem Festkörper



**Abb. 3** Die Spektralfunktion („Zustandsdichte“) der Anregungen eines wechselwirkenden Elektronensystems, das durch ein Hubbard-Modell beschrieben wird (paramagnetische Phase, halbe Bandfüllung): ohne Wechselwirkung (a); für schwache Wechselwirkung verlagert sich

etwas spektrales Gewicht von der Fermi-Energie  $E_F$  zu höheren bzw. niedrigeren Energien (b). Bei stärkerer Wechselwirkung entsteht eine Struktur mit drei typischen Maxima, die kohärenten Quasiteilchenanregungen nahe der Fermi-Energie bzw. dem inkohärenten unteren

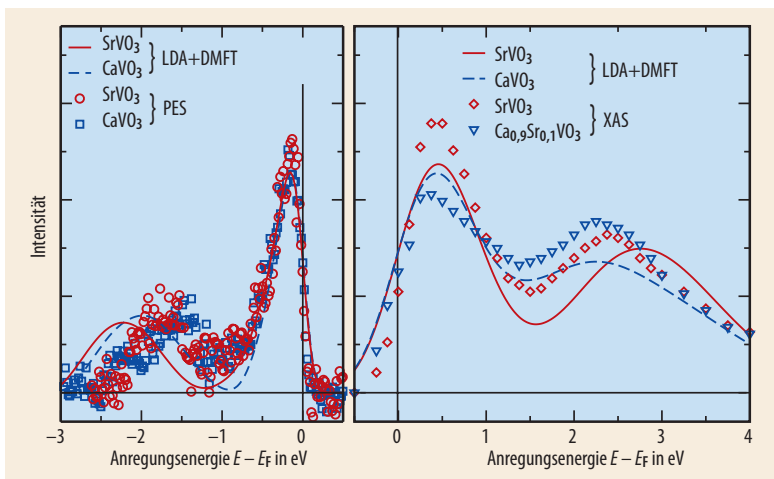
und oberen Hubbard-Band entsprechen (c). Oberhalb einer kritischen Wechselwirkungsstärke  $U_c$  verschwindet das Quasiteilchenmaximum (d), und das System wird ein Isolator, dessen Anregungsspektrum nur noch aus zwei getrennten Hubbard-Bändern besteht.

<sup>3)</sup> Hier muss noch eine eventuelle Doppelzählung der Wechselwirkung berücksichtigt werden, da auch die LDA-Bandstruktur bereits einige (im Wesentlichen statische) Anteile der elektronischen Wechselwirkung enthält.

in der Nähe eines Mott-Hubbard-Übergangs sowie langreichweitig geordnete Zustände beschreiben [13].

Ein besonders einfaches korreliertes Material, an dem sich die Anwendung des LDA+DMFT-Zugangs exemplarisch darstellen lässt, ist das Übergangsmetalloxid  $\text{SrVO}_3$  [14]. Das Energieband an der Fermi-Energie ist hier nur mit einem 3d-Elektron pro Atom besetzt. Zunächst wird die elektronische Bandstruktur mithilfe der LDA berechnet.  $\text{SrVO}_3$  hat eine rein kubische Kristallstruktur mit einem Vanadium-Ion pro Einheitszelle. Die kubische Symmetrie des Kristallfelds spaltet das formal fünffach entartete 3d-Orbital in ein dreifach entartetes  $t_{2g}$ -Orbital und ein energetisch höher liegendes, zweifach entartetes  $e_g$ -Orbital auf. Die einfachste Näherung berücksichtigt nur die lokale Wechselwirkung der Elektronen in den  $t_{2g}$ -Orbitalen. Mithilfe einer Variante der LDA lässt sich die Stärke der lokalen Coulomb-Abstoßung  $U \approx 5,5$  eV und die Austausch-Wechselwirkung („Hundsche Kopplung“)  $J \approx 1,0$  eV näherungsweise berechnen. Das so definierte Gittermodell korrelierter Elektronen wird nun im Rahmen der DMFT numerisch gelöst.

Abbildung 4 zeigt Ergebnisse für  $\text{SrVO}_3$  zusammen mit entsprechenden Messdaten (rote Kurven bzw. Symbole). Die lokale Zustandsdichte der besetzten Zustände lässt sich mittels Photoemissionsspektroskopie messen. Die entsprechende Zustandsdichte für die unbesetzten Zustände wurde mithilfe von Röntgenabsorptionsspektroskopie gemessen (Referenzen siehe [15]). Die Spektren zeigen offenbar ausgeprägte Korrelationseffekte, nämlich die Ausbildung eines unteren und oberen Hubbard-Bandes im Abstand von ungefähr  $-1,5$  eV bzw.  $2,5$  eV gemessen von der Fermi-Energie  $E_F$  sowie ein ausgeprägtes Maximum an der Fermi-Energie aufgrund von Quasiteilchenanregungen. Man beachte,



**Abb. 4** Vergleich der mit LDA+DMFT berechneten Spektralfunktion von  $\text{SrVO}_3$  und  $\text{CaVO}_3$  mit experimentellen Daten. Links ist die Spektralfunktion der besetzten Zustände gezeigt. Die experimentellen Datenpunkte wurden mit Photoemissionsspektroskopie (PES) gemessen. Rechts ist die Spektralfunktion der unbesetzten Zustände zu sehen. Experimentelle Datenpunkte wurden mit Röntgenabsorptionsspektroskopie (XAS)

gemessen. Die horizontale Linie markiert die experimentelle Subtraktion der Hintergrundintensität (nach [15]). Die charakteristische Struktur besteht klar erkennbar aus drei Maxima: dem unteren Hubbard-Band bei ca.  $-1,5$  eV, dem Quasiteilchenmaximum an der Fermi-Energie  $E_F$  (hier getrennt für besetzte (links) und unbesetzte (rechts) Zustände dargestellt) und dem oberen Hubbard-Band bei  $2,5$  eV.

dass die Maxima in der Nähe der Fermi-Energie in der linken und der rechten Abbildung beide durch dasselbe Quasiteilchenmaximum hervorgerufen werden und einmal die darin besetzten (links) bzw. unbesetzten (rechts) Zustände darstellen. Die blaue Kurven bzw. Symbole in Abb. 4 zeigen Ergebnisse für das verwandte System  $\text{CaVO}_3$ , das wegen des kleineren Calcium-Ions eine rhomboedrische Verzerrung aufweist. Lange wurde angenommen, dass  $\text{CaVO}_3$  deutlich stärker korreliert ist als  $\text{SrVO}_3$ . Die experimentellen Daten, die für die beiden Systeme sehr ähnlich sind, widerlegen diese Vermutung. Die Gründe für die Ähnlichkeiten lassen sich mit dem LDA+DMFT-Zugang detailliert mikroskopisch erklären. Die Struktur der Spektralfunktion mit ihren drei Maxima zeigt, dass sowohl  $\text{SrVO}_3$  als auch  $\text{CaVO}_3$  stark korrelierte Metalle sind. Der Vergleich von gemessenen und berechneten Spektren bestätigt vor allem das Auftreten der Drei-Maximum-Struktur in der Spektralfunktion eines realen Materials – genau so, wie es die DMFT bereits für das Hubbard-Modell vorhergesagt hat (Abb. 3). Offenbar kann die DMFT die physikalischen Prozesse, die zu dieser charakteristischen Struktur führen, korrekt erklären.

DMFT-basierte Untersuchungsmethoden haben sich als konzeptioneller Durchbruch bei der realistischen Modellierung der elektronischen, magnetischen und strukturellen Eigenschaften von Übergangsmetallen und ihren Oxiden sowie Materialien mit f-Elektronen erwiesen [13]. Allerdings bedarf es hier noch erheblicher Weiterentwicklungen, bis es möglich sein wird, auch komplexe korrelierte Systeme zu beschreiben und ihre Eigenschaften vorherzusagen. Insbesondere muss die Schnittstelle zwischen den beiden Hauptkomponenten des LDA+DMFT-Zugangs, der Bandstrukturtheorie und der Vielteilchentheorie, verbessert werden. Ein weiteres wichtiges Ziel besteht darin, die freie Energie korrelierter Festkörper sowie mikroskopischer Kräfte realistisch zu berechnen. Bei diesen Entwicklungen gilt es auch, die numerischen Verfahren zur Lösung der komplizierten DMFT-Gleichungen fortlaufend zu verbessern, da es nur dann möglich sein wird, Materialien mit vielen Energiebändern und starken lokalen Wechselwirkungen bei niedrigen Temperaturen zu untersuchen.

## Neue Entwicklungen und Perspektiven

Aufgrund intensiver internationaler Forschungsbemühungen hat sich die DMFT während der letzten zwanzig Jahre zu der geeignetsten Methode für die Untersuchung elektronisch korrelierter Systeme entwickelt. Die Verallgemeinerung dieser Theorie und ihrer Anwendungsmöglichkeiten ist derzeit Gegenstand aktiver Forschung. Dabei spielen nichtlokale Erweiterungen der DMFT eine große Rolle [16]. Sie werden es ermöglichen, auch kurzreichweitige Korrelationseffekte, die auf der Skala mehrerer Gitterkonstanten auftreten, zu erklären. Hierzu gehören auch Untersuchungen, die über homogene Systeme hinausgehen und den

Einfluss interner oder externer Inhomogenitäten, wie etwa Ober- oder Grenzflächen, berücksichtigen [17]. Ein verbessertes Verständnis von Korrelationseffekten in dünnen Filmen und mehrlagigen Nanostrukturen ist angesichts der neuartigen Funktionalitäten dieser Strukturen und ihrer möglichen Anwendung in elektronischen Bauteilen besonders erstrebenswert [2].

Auch bei der Untersuchung von Korrelationsphänomenen auf dem Gebiet kalter Atome in optischen Gittern hat sich die DMFT als äußerst nützlich erwiesen. Hier hat sich in den letzten Jahren geradezu eine Art Werkzeugkasten für die Simulation und Untersuchung quantenmechanischer Vielteilchensysteme entwickelt [18]. Das Hubbard-Modell mit seiner strikt lokalen Wechselwirkung, die für Elektronen im Festkörper ja nur eine mehr oder minder starke Näherung ist, lässt sich dabei wegen der extrem kurzreichweitigen Wechselwirkung zwischen Atomen erstmalig experimentell realisieren und kontrolliert überprüfen. Auf diese Weise können Experimente mit kalten Atomen in optischen Gittern sogar die Qualität der Ergebnisse der DMFT bewerten. Erste Ergebnisse belegen, dass die DMFT tatsächlich auch für endlich-dimensionale Systeme quantitativ zuverlässige Ergebnisse liefert. Als weiteres faszinierendes Arbeitsgebiet hat sich in der letzten Zeit die Untersuchung korrelierter Systeme im Nichtgleichgewicht mithilfe einer entsprechenden Verallgemeinerung der DMFT erwiesen [19]. Eine wichtige Ziel derartiger Forschung ist beispielsweise, die Ergebnisse zeitaufgelöster spektroskopischer Experimente zu beschreiben, zu erklären und vorherzusagen.

Vor allem aber hat die Verknüpfung der DMFT mit herkömmlichen Methoden zur Berechnung elektronischer Bandstrukturen zu einem konzeptionell neuen Verfahren für die realistische Modellierung korrelierter Materialien geführt. Es ist zu erwarten, dass DMFT-basierte Zugänge in zehn bis fünfzehn Jahren ähnlich erfolgreich und standardisiert sein werden wie die gegenwärtig verfügbaren Dichtefunktional-Methoden. Die Entwicklung eines umfassenden theoretischen Zugangs, der es ermöglicht, Korrelationseffekte in Materie – von komplexen anorganischen Materialien bis hin zu biologischen Systemen – quantitativ zu verstehen und vorherzusagen, ist eine große Herausforderung für die theoretische Physik.

### Danksagung

Ich danke allen meinen Mitarbeitern und Koautoren herzlich für die Zusammenarbeit bei der Entwicklung der Grundlagen der Dynamischen Mean-Field-Theorie und ihrer Anwendungen. Diese Kollaborationen sind für mich immer eine große Freude und intellektueller Gewinn gewesen. Mein besonderer Dank gilt Walter Metzner.

### Literatur

- [1] M. Imada, A. Fujimori und Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998); F. Steglich, *Physik Journal*, August/September 2004, S. 65; H.v. Löhneysen et al., *Rev. Mod. Phys.* **79**, 1015 (2007)  
 [2] Y. Tokura, *Physics Today*, Juli 2003, S. 50; J. Mannhart und D. G. Schlom, *Physik Journal*, Juni 2005, S. 45

- [3] P. Hohenberg und W. Kohn, *Phys. Rev.* **136B**, 864 (1964); W. Kohn und L. J. Sham, *Phys. Rev.* **140**, A1133 (1965); R. O. Jones und O. Gunnarsson, *Rev. Mod. Phys.* **61**, 689 (1989)  
 [4] P. Fulde, *Electron Correlations in Molecules and Solids*, Springer Verlag, Berlin (1995)  
 [5] M. C. Gutzwiller, *Phys. Rev. Lett.* **10**, 159 (1963); J. Hubbard, *Proc. Roy. Soc. London* **A276**, 238 (1963); J. Kanamori, *Prog. Theor. Phys.* **30**, 275 (1963); M. C. Gutzwiller, *Physik Journal*, Juli/August 2003, S. 39  
 [6] W. Metzner und D. Vollhardt, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 324 (1989); D. Vollhardt, in *Correlated Electron Systems*, hrsg. von V. J. Emery, World Scientific, Singapore (1993), S. 57; W. Metzner, *Phys. Bl.*, Juli/August 1995, S. 665  
 [7] E. Müller-Hartmann, *Z. Phys. B* **74**, 507 (1989); U. Brandt und C. Mielsch, *Z. Phys. B* **75**, 365 (1989); H. Schweitzer und G. Czocholl, *Solid State Comm.* **69**, 171 (1989); P. G. J. van Dongen, F. Gebhard und D. Vollhardt, *Z. Phys. B* **76**, 199 (1989)  
 [8] V. Janiš, *Z. Phys. B* **83**, 227 (1991); V. Janiš und D. Vollhardt, *Int. J. Mod. Phys. B* **6**, 731 (1992)  
 [9] A. Georges und G. Kotliar, *Phys. Rev. B* **45**, 6479 (1992)  
 [10] M. Jarrell, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 168 (1992); C. Lavallo, M. Rigol, und A. Muramatsu, *Physik Journal*, Mai 2004, S. 57; R. Bulla, T. A. Costi und Th. Pruschke, *Rev. Mod. Phys.* **80**, 395 (2008)  
 [11] A. Georges et al., *Rev. Mod. Phys.* **68**, 13 (1996); G. Kotliar und D. Vollhardt, *Physics Today* **57**, März 2004, S. 53; D. Vollhardt, erscheint in: *Proceedings of the XIV Training Course in the Physics of Strongly Correlated Systems* (AIP, 2010), arXiv:1004.5069  
 [12] M. C. Gutzwiller, *Phys. Rev.* **137**, A 1726 (1965); W. F. Brinkman und T. M. Rice, *Phys. Rev. B* **2**, 4302 (1970); D. Vollhardt, *Rev. Mod. Phys.* **56**, 99 (1984); W. Metzner und D. Vollhardt, *Phys. Rev. B* **37**, 7382 (1988)  
 [13] V. I. Anisimov et al., *J. Phys.: Cond. Matt.* **9**, 7359 (1997); A. I. Lichtenstein und M. I. Katsnelson, *Phys. Rev. B* **57**, 6884 (1998); K. Held et al., *Psi-k Newsletter* **56**, 65 (2003); nachgedruckt in *Phys. Status Solidi B* **243**, 2599 (2006); G. Kotliar et al., *Rev. Mod. Phys.* **78**, 865 (2006); K. Held, *Adv. Phys.* **56**, 829 (2007); J. Kuneš et al., *Eur. Phys. J. Special Topics* **180**, 5 (2010)  
 [14] A. Sekiyama et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 156402 (2004); E. Pavarini et al., *Phys. Rev. Lett.* **92**, 176403 (2004)  
 [15] I. A. Nekrasov et al., *Phys. Rev. B* **72**, 155106 (2005)  
 [16] Th. Maier et al., *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1027 (2005)  
 [17] M. Potthoff und W. Nolting, *Phys. Rev. B* **59**, 2549 (1999); M. Takizawa et al., *Phys. Rev. Lett.* **97**, 057601 (2006); J. K. Freericks, *Transport in Multilayered Nanostructures – The Dynamical Mean-field Approach*, Imperial College Press, London (2006); M. Snoek et al., *New J. Phys.* **10**, 093008 (2008)  
 [18] W. Hofstetter et al., *Phys. Rev. Lett.* **89**, 220407 (2002); I. Bloch, J. Dalibard und W. Zwerger, *Rev. Mod. Phys.* **80**, 885 (2008); U. Schneider et al., *Science* **322**, 1520 (2008)  
 [19] V. Turkowski und J. K. Freericks, *Phys. Rev. B* **71**, 085104 (2005); M. Eckstein, M. Kollar und P. Werner, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 056403 (2009); C. Kollath, *Physik Journal*, Aug./Sept. 2009, S. 71

### DER AUTOR

**Dieter Vollhardt** (links, mit DPG-Präsident Gerd Litfin) studierte Physik an der Universität Hamburg, wo er – nach einem dreijährigen Aufenthalt an der University of Southern California in Los Angeles (USA) – 1979 auch promovierte. Anschließend arbeitete er als wissenschaftlicher Mitarbeiter und später als Heisenberg-Stipendiat der DFG am Max-Planck-Institut für Physik und Astrophysik in München. 1984 habilitierte er sich an der TU München. Im Jahr 1987 wurde er an die RWTH Aachen und 1996 an die Universität Augsburg berufen. Sein Forschungsgebiet ist die Theorie korrelierter quantenmechanischer Vielteilchensysteme, insbesondere elektronische Korrelationen in Modellen und Materialien, Magnetismus, ungeordnete Systeme sowie flüssiges Helium-3.



J. Heupel