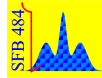


Korrelierte Elektronen im Nichtgleichgewicht

Marcus Kollar



Theoretische Physik III
Zentrum für Elektronische
Korrelationen und Magnetismus
Institut für Physik, Universität Augsburg



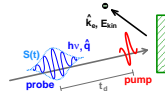
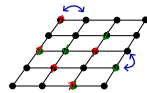
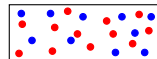
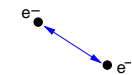
Augsburg, 13. Juli 2009

1. Einführung

- ▶ Korrelierte Elektronen
- ▶ Pump-Probe-Spektroskopie

Übersicht

1. Einführung
 - ▶ Korrelierte Elektronen
 - ▶ Pump-Probe-Spektroskopie
2. Quantensysteme im **Nichtgleichgewicht** und Vorhersagen der Statistischen Mechanik
3. **Realzeit-Dynamik** im Hubbard-Modell [1,2,5]
4. Theorie für **Pump-Probe-Spektroskopie** [3,4,5]



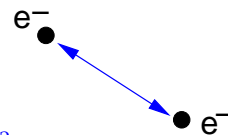
- [1] Eckstein & Kollar, Phys. Rev. Lett. **100**, 120404 (2008)
- [2] Kollar & Eckstein, Phys. Rev. A **78**, 013626 (2008)
- [3] Eckstein & Kollar, Phys. Rev. B **78**, 205119 (2008)
- [4] Eckstein & Kollar, Phys. Rev. B **78**, 245113 (2008)
- [5] Eckstein, Kollar, Werner, Phys. Rev. Lett. (im Druck), arXiv:0904.0976

Zusammenarbeit mit Martin Eckstein (U Augsburg) und Philipp Werner (ETH Zürich)

Korrelierte Elektronen

Elektronen: bestimmen die Eigenschaften von Festkörpern

- Fermionen mit Spin $\frac{1}{2}$ (\downarrow , \uparrow)



- Coulomb-Wechselwirkung:

▶ Elektrostatische Abstoßung: $\hat{H}_{\text{int}} = \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}$

- ▶ Elektronen nicht unabhängig, sondern **korreliert**

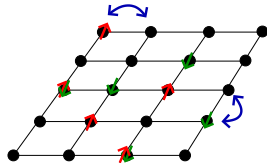
Korrelationen:

allgemein: $\langle A B \rangle \neq \langle A \rangle \langle B \rangle$

Elektronen, z.B.: $\langle \hat{n}(\mathbf{r}) \hat{n}(\mathbf{r}') \rangle \neq \langle \hat{n}(\mathbf{r}) \rangle \langle \hat{n}(\mathbf{r}') \rangle$

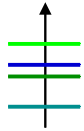
Elektronen im Festkörper

Festkörper: periodisches Potential der Ionenrümpfe



$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{ion}} + \hat{H}_{\text{kin}} + \hat{H}_{\text{int}}$$

Lösung: (wenn \hat{H}_{int} unwichtig)



einzelnes Atom
 $\phi_\alpha(\mathbf{r})$
s, p, d, f, ...



Festkörper
Bloch: $\psi_{nk}(\mathbf{r})$
Wannier: $\phi_n(\mathbf{r} - \mathbf{R})$



freie Elektronen
 $\frac{1}{\sqrt{V}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$

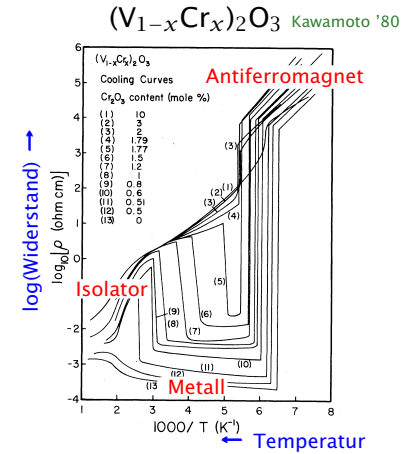
⇒ Metalle, Halbleiter, Isolatoren, ...

Mott-Metall-Isolator-Übergang

Mott-Isolator: Mott '49

Coulomb-Wechselwirkung \hat{H}_{int}
verhindert Doppelbesetzungen

⇒ Mott-Metall-Isolator-Übergang
bei halbgefülltem Band



Periodensystem der Elemente

hydrogen 1 H																	helium 2 He
lithium 3 Li	beryllium 4 Be	Key: element name, atomic number, symbol, atomic weight (mean relative mass)										boron 5 B	carbon 6 C	nitrogen 7 N	oxygen 8 O	fluorine 9 F	neon 10 Ne
sodium 11 Na	magnesium 12 Mg	scandium 21 Sc	titanium 22 Ti	vanadium 23 V	chromium 24 Cr	manganese 25 Mn	iron 26 Fe	cobalt 27 Co	nickel 28 Ni	copper 29 Cu	zink 30 Zn	aluminium 13 Al	silicon 14 Si	phosphorus 15 P	sulfur 16 S	chlorine 17 Cl	argon 18 Ar
rubidium 37 Rb	strontium 38 Sr	yttrium 39 Y	zirkonium 40 Zr	niobium 41 Nb	niobium 42 Nb	technetium 43 Tc	ruthenium 44 Ru	rhodium 45 Rh	paladium 46 Pd	indium 49 In	cadmium 48 Cd	gallium 31 Ga	germanium 32 Ge	arsenic 33 As	seltenium 34 Se	bromine 35 Br	krypton 36 Kr
caesium 55 Cs	barium 56 Ba	lanthanum 57 La	cerium 58 Ce	praseodymium 59 Pr	neodymium 60 Nd	promethium 61 Pm	samarium 62 Sm	europium 63 Eu	gadolinium 64 Gd	terbium 65 Tb	dysprosium 66 Dy	holmium 67 Ho	erbium 68 Er	thulium 69 Tm	ytterbium 70 Yb	radium 88 Ra	actinium 89 Ac
franzium 87 Fr	radium 88 Ra	actinium 89 Ac	thorium 90 Th	protactinium 91 Pa	uranium 92 U	neptunium 93 Np	plutonium 94 Pu	amerizium 95 Am	curium 96 Cm	berkellium 97 Bk	californium 98 Cf	esbohmium 99 Es	fermium 100 Fm	mendelevium 101 Md	nobelium 102 No	unbekannt 103 Uu	unbekannt 104 Uu

teilweise gefüllte d-Orbitale

teilweise gefüllte f-Orbitale

d und f-Orbitale ⇒ starke e-e-Wechselwirkung ⇒ Korrelation

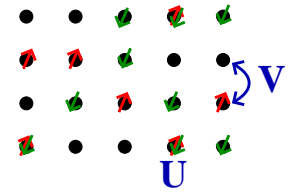
Hubbard-Modell

Einband-Hubbard-Modell:

$$H = \sum_{ij\sigma} V_{ij\sigma} \hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{j\sigma} + U \sum_i \hat{n}_{i\uparrow} \hat{n}_{i\downarrow}$$

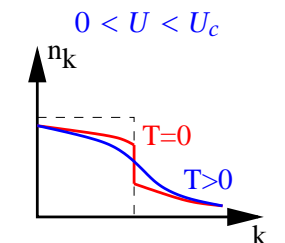
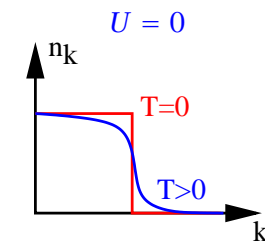
$$= \sum_{k\sigma} \epsilon_{k\sigma} \hat{c}_{k\sigma}^\dagger \hat{c}_{k\sigma} \Rightarrow \text{Bandstruktur}$$

Gutzwiller '63; Kanamori '63; Hubbard '63



Fermi-Flüssigkeit: Quasiteilchen-Anregungen

Landau '56



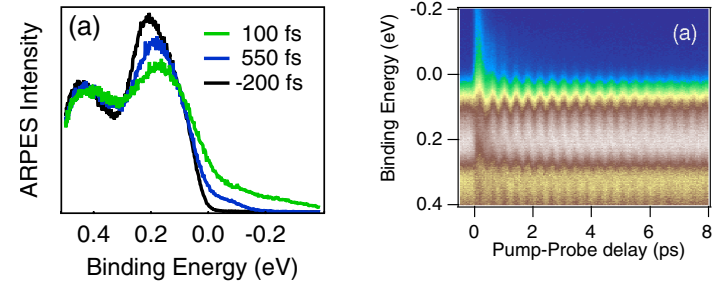
1. Einführung

- ▶ Korrelierte Elektronen
- ▶ Pump-Probe-Spektroskopie

pump-probe-Photoemissionspektroskopie

Photoanregung von 1T-TaS₂:

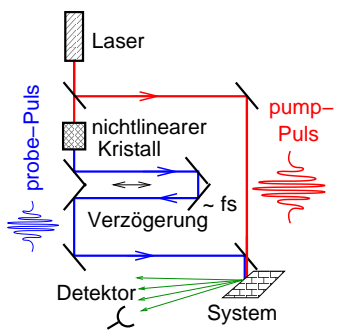
Perfetti, Loukakos, Lisowski, Bovensiepen, Berger, Biermann, Cornaglia, Georges, Wolf '06; '08



- 50-fs *pump*-Pulse (1.5 eV), 80-fs *probe*-Pulse (6 eV)
- Bildung eines metallischen Zustands, Relaxation nach ~700 fs
- Oszillationen von Gitter- und Elektronensystem

Zeitaufgelöste Spektroskopie

Das *pump-probe*-Prinzip:



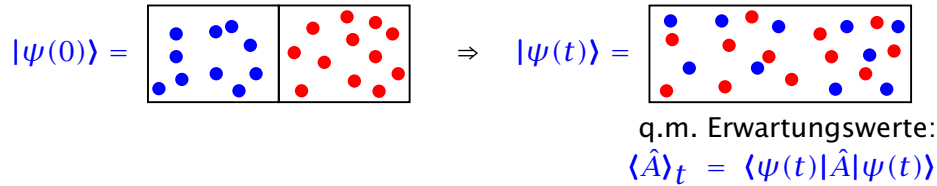
- pump-Laserpuls: bringt System in Nichtgleichgewichtszustand
- probe-Laserpuls: untersucht System nach Wartezeit t_d

2. Quantensysteme im Nichtgleichgewicht und Vorhersagen der Statistischen Mechanik

- Zeitaufgelöste Photoemissionsspektroskopie: analysiert vom System emittierte Elektronen
- Zeitaufgelöste optische Spektroskopie: analysiert vom System reflektiertes/transmittiertes Licht

Realzeit-Dynamik von Quantensystemen

Quantenmechanik: $i\hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = \hat{H}(t) |\psi(t)\rangle$



“Quanten-Abschreckung”: (quench)

- Starte mit $|\psi_0\rangle$ und schalte bei $t = 0$ zu Hamiltonian \hat{H}
- Zeitentwicklung für $t \geq 0$:

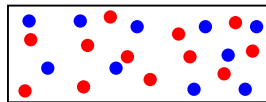
$$|\psi(t)\rangle = e^{-i\hat{H}t} |\psi_0\rangle = \sum_n \langle n | \psi_0 \rangle e^{-iE_n t} |n\rangle$$

Komponenten
oszillieren
für alle t !

Relaxation und neues Gleichgewicht

Frage: Relaxation in stationären Zustand? $\langle \hat{A} \rangle_{t \rightarrow \infty} \stackrel{?}{=} \text{const}$

⇒ nur möglich für große Systeme,
einfache Observable \hat{A} , kompliziertes \hat{H}



Frage: Thermalisierung?

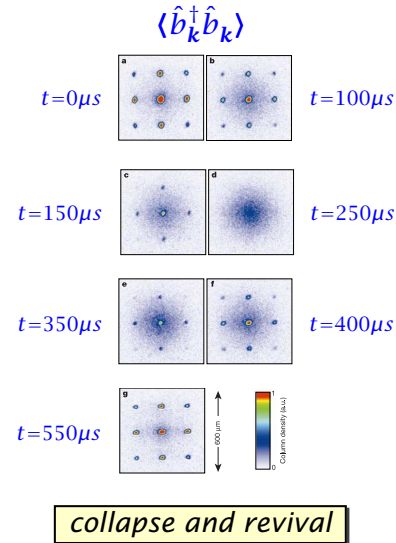
- Vorhersage der Statistischen Mechanik: $\langle \hat{A} \rangle_{t \rightarrow \infty} = \langle \hat{A} \rangle_{\text{ensemble}}$
- Ensemble-Erwartungswert: $\langle \hat{A} \rangle_{\text{ensemble}} = \text{Sp}(\rho_{\text{ensemble}} \hat{A})$

z.B.: $\rho_{\text{ensemble}} \propto e^{-\hat{H}/k_B T}$ mit $E = \text{Sp}(\rho_{\text{ensemble}} \hat{H})$

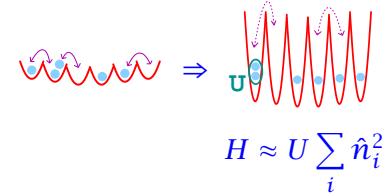
Kollaps und Wiederkehr

Abrupte Erhöhung der Wechselwirkung von ^{87}Rb -Atomen:

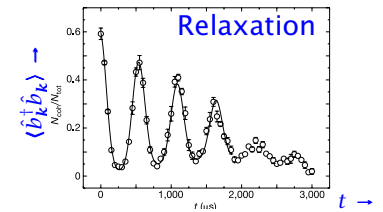
Greiner, Mandel, Hänsch, Bloch '02



$|\psi(0)\rangle = \text{Bose-Kondensat}$



$|\psi(t)\rangle = e^{-i\hat{H}t} |\psi(0)\rangle$ oszilliert

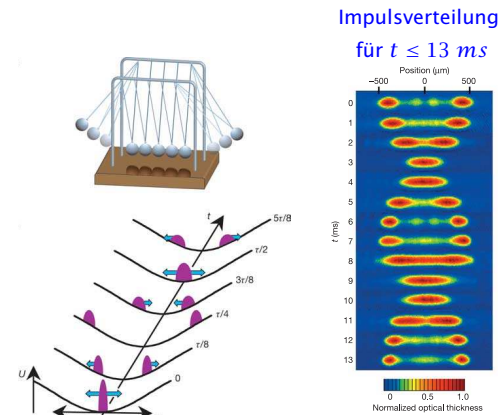


Quanten-Kugelstoßpendel

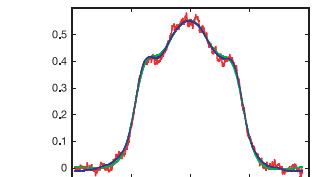
Oszillationen gefangener ^{87}Rb -Atome:

Kinoshita, Wenger, Weiss '06

$\langle \hat{b}_k^\dagger \hat{b}_k \rangle$ erreicht stationären, aber nichtthermischen Zustand



Stationäre Impulsverteilung
für $t \geq 200 \text{ ms}$

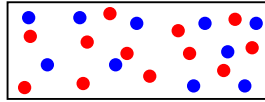


(thermischer Zustand: Gauß-Kurve)

keine Thermalisierung,
weil System (fast) integrierbar

Statistische Mechanik für das Gleichgewicht

Vorhersage für das Gleichgewicht:



- Fundamentales Postulat:

Alle zugänglichen Mikrozustände sind gleichwahrscheinlich

$$\Leftrightarrow S = -\text{Sp}[\hat{\rho} \ln \hat{\rho}] \text{ wird maximiert}$$

- \hat{A}_i erhalten \Rightarrow fixiere $\text{Sp}[\hat{\rho}_{\text{ensemble}} \hat{A}_i] = \langle \hat{A}_i \rangle_{t=0}$

$$\Rightarrow \hat{\rho}_{\text{ensemble}} \propto \exp(-\sum_i \lambda_i \hat{A}_i)$$

Boltzmann-Gibbs-Ensemble

Maxwell 1866, Boltzmann 1872, Gibbs 1878
von Neumann 1927, Jaynes 1957, ..., Balian 1991

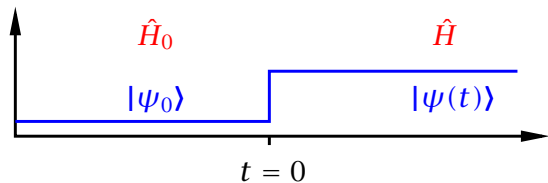
Für integrable Systeme: Generalisiertes Gibbs-Ensemble

Girardeau '69
Rigol et al. '06

\Rightarrow fixiere außer $\hat{A}_1 = \hat{H}$ auch $\hat{A}_2, \dots, \hat{A}_L$ mit $L \propto$ Systemgröße

Energiezufuhr bei Parameteränderung

Parameteränderung:



$$E_0 = \langle \psi_0 | \hat{H}_0 | \psi_0 \rangle \Rightarrow E = \langle \psi_0 | \hat{H} | \psi_0 \rangle$$

Am System verrichtete Arbeit: $W = E - E_0$

- W ist mit $P(W)$ zufallsverteilt

Jarzynski '97
Talkner, Lutz, Hänggi '07
Silva '09

- $P(W)$ in mesoskopischen Systemen beobachtbar
- bei globalen Änderungen: W extensiv, $P(W)$ sehr scharf

3. Realzeit-Dynamik im Hubbard-Modell

- Hubbard-Modell in $d = 1$
- Hubbard-Modell in $d = \infty$

Hubbard-Modell in $d=1$ mit $1/r$ -Hüpfen

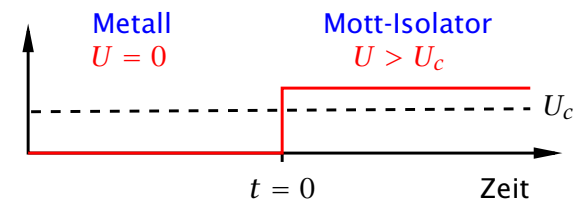
Hubbard-Kette mit $1/r$ -Hüpfen:

Gebhard & Ruckenstein '92

$$\hat{H} = \sum_{i\bar{j}\sigma} V_{ij} \hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{j\sigma} + U \sum_i \hat{n}_{i\uparrow} \hat{n}_{i\downarrow} \quad \text{mit} \quad V_{ij} \propto \frac{1}{i-j}$$

- Äquivalent zu freien Bosonen mit ∞ -vielen Erhaltungsgrößen
- Mott-Metall-Isolator-Übergang bei $n = 1$ und $U_c = W =$ Bandbreite

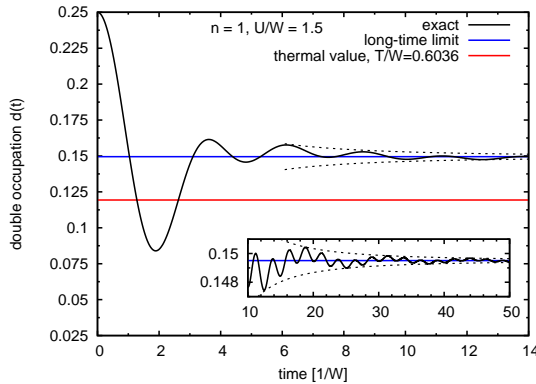
Schalten zum Isolator:



Relaxation der Doppelbesetzung

Schalten vom Metall ($U = 0$) zum Isolator ($U = 1.5W$):

Kollar & Eckstein '08



Doppelbesetzung
 $d(t) = \langle \hat{n}_{i\uparrow} \hat{n}_{i\downarrow} \rangle_t$

- relaxiert für $t \rightarrow \infty$ ✓
- thermalisiert nicht ✗
- $d(\infty)$ wird durch generalisiertes Gibbs-Ensemble beschrieben ✓

Generalisiertes Gibbs-Ensemble

Für integrable Systeme:

$$\rho_{GGE} \propto \exp\left(-\sum_{i=1}^L \lambda_i \hat{A}_i\right) \Rightarrow \text{detaillierte Erinnerung an } t = 0$$

$$= \exp(-\lambda_1 \hat{A}_1) \exp(-\lambda_2 \hat{A}_2) \cdots \exp(-\lambda_L \hat{A}_L)$$

GGEs sind weniger universell als thermische Ensembles

Statistische Vorhersage: $\langle \hat{A} \rangle_t \rightarrow \infty \stackrel{?}{=} \langle \hat{A} \rangle_{GGE}$

Richtig für

- schwach korrelierte Observable
 - schwach korrelierte Anfangszustände
- } erfüllt für $1/r$ -Hubbard-Modell

Kollar & Eckstein '08

3. Realzeit-Dynamik im Hubbard-Modell

- ▶ Hubbard-Modell in $d = 1$
- ▶ Hubbard-Modell in $d = \infty$

Dynamische Mean-Field-Theorie

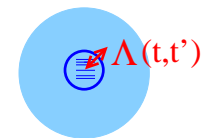
DMFT für das Gleichgewicht: "Ausintegrieren des Gitters"

Gittersystem



DMFT
 \rightarrow

Störstelle in Medium



- Exakt für Dimension $d = \infty$

Metzner & Vollhardt '89, Georges et al. '96

- Abbildung auf Störstellenproblem + Selbstkonsistenz

Brandt & Mielsch '89, Georges & Kotliar '92

Nichtgleichgewichts-DMFT: Zeitentwicklung

- Falicov-Kimball-Modell: $V_{ij\downarrow} = 0$, lösbar
- Hubbard-Modell: Realzeit-QMC

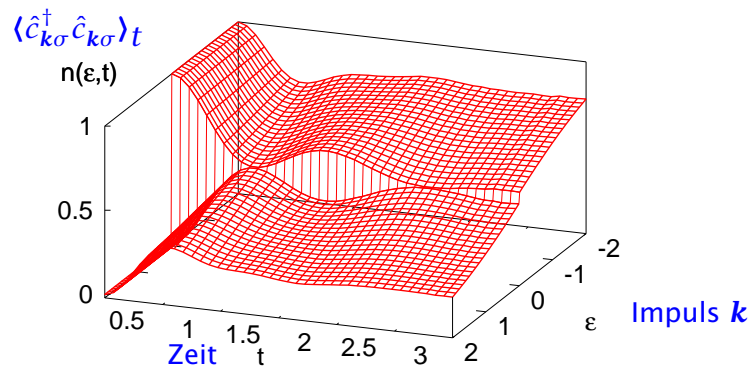
Turkowski & Freericks '05
 Eckstein & Kollar '08
 Tsuji, Oka & Aoki '08

Werner, Oka, Millis '08
 Eckstein, Kollar, Werner '09

Relaxation der Impulsverteilung

Hubbard-Modell: (DMFT, Dichte $n = 1$, Bandbreite 4) Eckstein, Kollar, Werner '09

Schalten von $U = 0$ nach $U = 5$

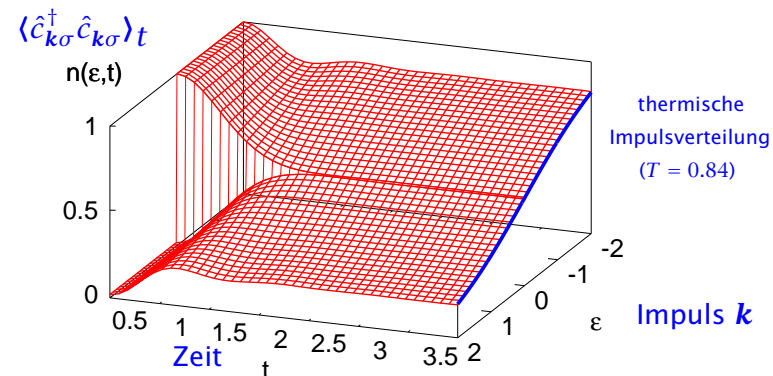


Lang anhaltende *collapse-and-revival*-Oszillationen
wegen Nähe zu $U = \infty$

Relaxation der Impulsverteilung

Hubbard-Modell: (DMFT, Dichte $n = 1$, Bandbreite 4) Eckstein, Kollar, Werner '09

Schalten von $U = 0$ nach $U = 3.3$

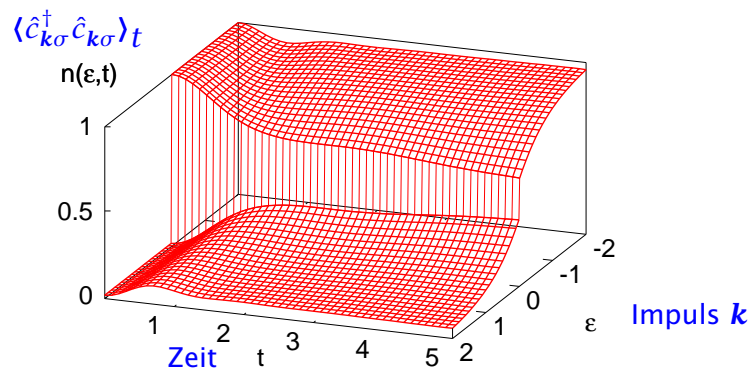


Schnelle Thermalisierung bei mittleren U ,
Dynamischer Phasenübergang bei $U_c^{\text{dyn}} \approx 3.3$
(Gleichgewicht: $U_c = 4.8$)

Relaxation der Impulsverteilung

Hubbard-Modell: (DMFT, Dichte $n = 1$, Bandbreite 4) Eckstein, Kollar, Werner '09

Schalten von $U = 0$ nach $U = 2$



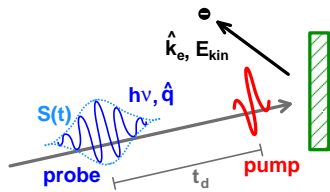
Langsame Relaxation: *Präthermalisierung*
wegen Nähe zum integrablen Punkt $U = 0$

Moeckel & Kehrein '08

4. Theorie für Pump-Probe-Spektroskopie

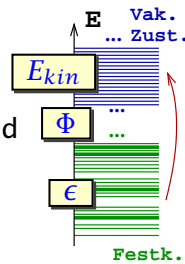
- ▶ Zeitaufgelöste Photoemissionsspektroskopie
- ▶ Zeitaufgelöste optische Spektroskopie

Zeitaufgelöste Photoemissionsspektroskopie



Intensität der Photoelektronen:

$$I(\hat{k}_e, E_{kin}) = \frac{dN(\hat{k}_e, E_{kin})}{d\Omega_{\hat{k}_e} dE_{kin}}$$



Sudden approximation: e^- geht direkt in Vakuum-Zustand

- Gleichgewicht: $E_{kin} = E_{photon} - \Phi - \epsilon$
- Nichtgleichgewicht: $S(t) \leftrightarrow \tilde{S}(\omega)$

Energieunschärfe $\delta E \approx \hbar/\delta \Leftrightarrow$ Pulsdauer δ

Beziehung zur Green-Funktion:

$$I_{k\sigma}(\omega, t_d) \propto \int dt \int dt' S(t) S(t') e^{i\omega(t' - t)} G_{k\sigma}^<(t + t_d, t' + t_d)$$

Freericks, Krishnamurthy, Pruschke '08

Oszillationen des angeregten Mott-Isolators

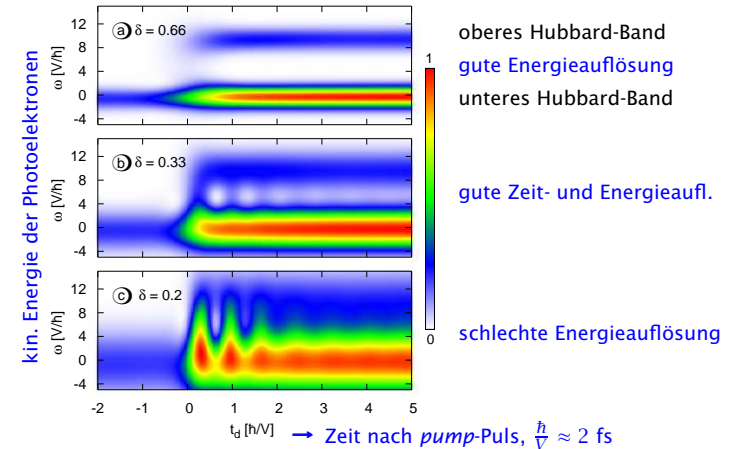
Mott-Isolator (Falicov-Kimball-Modell, $V_{ij\downarrow} = 0, U = 10V$)
 wird in metallischen Zustand gepumpt ($U = 1V$):

Eckstein & Kollar '08

langer Puls
schlechte Zeitaufl.

mittlerer Puls

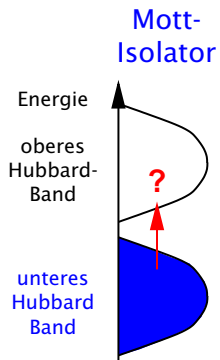
kurzer Puls
gute Zeitauflösung



\Rightarrow collapse-and-revival-Oszillationen in Mott-Energieücke

Effekt des pump-Pulses

Photo-Dotierung: Elektronen werden in 'leeres Band' gepumpt



Für Mott-Isolator:

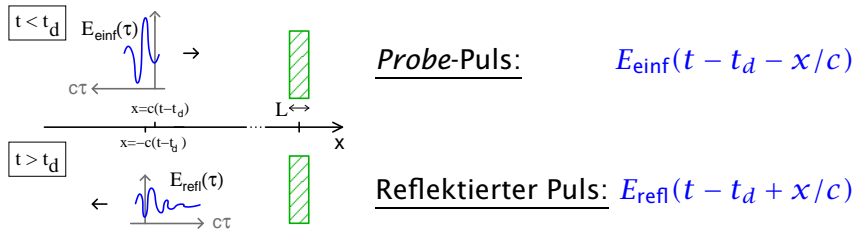
- Band-Bild ungültig
- Modellierung:
 - ▶ Zustand nach pump-Puls: ($t = 0$)
Metall mit $U < U_c$
 - ▶ Hamiltonian: ($t > 0$)
Isolator mit $U > U_c$

4. Theorie für Pump-Probe-Spektroskopie

- ▶ Zeitaufgelöste Photoemissionsspektroskopie
- ▶ Zeitaufgelöste optische Spektroskopie

Zeitaufgelöste optische Spektroskopie

Reflektion des *probe*-Pulses:



- *probe*-Puls erzeugt Strom:

$$\delta j_{\alpha}(\mathbf{r}, t) = \int dt' \sigma_{\alpha\beta}(t, t', \mathbf{r}) \delta E_{\beta}(\mathbf{r}, t') \quad (\lambda_{\text{probe}} \gg a_{\text{lattice}})$$

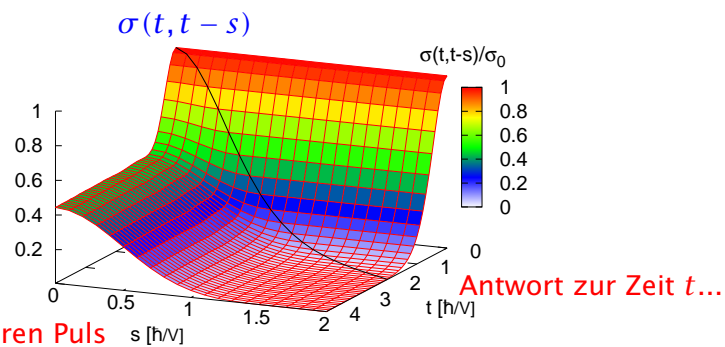
- Strom erzeugt elektrisches Feld:

$$E_{\text{refl}}(\tau) = \int ds r(t_d + \tau, t_d + \tau - s) E_{\text{einf}}(\tau - s)$$

Dünne Schicht: $r(t, t') = \frac{L}{c} \underbrace{\sigma(t, t')}_{\text{DMFT}} \Rightarrow \int dt'' \sum_{\mathbf{k}} \dots G_{\mathbf{k}}(t, t'') \quad (L \gg a_{\text{lattice}})$ Eckstein & Kollar '08

Optische Leitfähigkeit eines korrelierten Metalls

Korreliertes Metall (Hubbard-Modell mit $U = 3V$, Bandbreite = $4V$) wird in unkorrelierten Zustand gepumpt ($U = 0$): Eckstein, Kollar, Werner '08



- Bei $t=0$: $\sigma(0, -s) = \text{const} \Rightarrow \tilde{\sigma}(\omega, t)$ hat Drude- δ -Peak ($U = 0, T = 0$)
- Bei $t \approx 1/V$: Peak in $\sigma(t, t-s) \Rightarrow \tilde{\sigma}(\omega, t)$ hat breiten Drude-Peak ($U > 0, T > 0$)

Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassung und Ausblick

Korrelierte Elektronen im Nichtgleichgewicht:

- Schnelle Thermalisierung nur abseits integrierbarer Punkte
- Pump-Probe-Spektroskopie: Rückschlüsse auf Realzeit-Dynamik

Ausblick:

- Dynamisches Phasendiagramm
- Kopplung von Elektronen und Gitterschwingungen