

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
«УРАЛЬСКИЙ ФЕДЕРАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ ИМЕНИ ПЕРВОГО
ПРЕЗИДЕНТА РОССИИ Б.Н. ЕЛЬЦИНА»

Медведева Дарья Сергеевна

**ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ
НЕЛОКАЛЬНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ НА
СВОЙСТВА СИСТЕМ С СИЛЬНЫМИ
ЭЛЕКТРОННЫМИ КОРРЕЛЯЦИЯМИ**

01.04.07 — Физика конденсированного состояния

Автореферат

диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, доцент,
Мазуренко Владимир Владимирович

Екатеринбург — 2019

Общая характеристика работы

Актуальность исследования. В последние десятилетия компьютерное моделирование позволило изучить и понять различные квантовые физические эффекты, такие как квантовый эффект Холла, наблюдаемый в двумерных электронных системах, тяжелые фермионы в сверхпроводниках (CeCu_2Si , UPt_3), магнетиках (NpBe_{13} , U_2Zn_{17} , UCd_{11}) и неупорядоченных системах (CeAl_3 и CeCu_6), нефермижидкостное поведение, эффект Кондо в системах с тяжелыми фермионами и многие другие. Природа этих эффектов обусловлена наличием в системах сильных корреляций между электронами внешних оболочек атомов в узлах кристаллической решетки [1]. Отдельное внимание при описании таких сильно коррелированных систем (СКС) уделяется разработке моделей с учетом межузельных электрон-электронных взаимодействий. Такие модели имеют мощный потенциал применения, поскольку могут быть использованы при описании большого количества материалов и физических систем различных типов. Кроме того, в СКС со значительными нелокальными взаимодействиями обнаруживаются специфические фазовые состояния, одним из которых является зарядовое упорядочение. В данном состоянии электроны локализуются на определенных узлах кристаллической решетки, вследствие чего происходит перераспределение электронной плотности. Другой важной особенностью СКС является переход металл - изолятор моттовского типа, использование которого открывает путь к созданию транзисторов, переключателей и устройств хранения информации малых размеров, что крайне важно, так как наблюдается общемировая тенденция к миниатюризации вычислительных устройств.

Базовой моделью в теории СКС является модель Хаббарда [2], которая позволяет исследовать их электронные и магнитные свойства. Ее приближенное решение может быть получено с использованием различных подходов. На основе самосогласованных диаграммных теорий можно решать данную задачу с помощью квантового эмбединга (вложения), идея которого заключается в объединении двух различных квантовых симуляций: строгого расчета выделенного объекта и приближенного расчета его окружения. Одним из примеров такого подхода является теория динамического среднего поля (Dynamical Mean-Field Theory, DMFT) [3], в которой рассмотрение задачи

многих тел сводится к описанию выделенного иона кристаллической решетки в некотором поле. Ранее в работах по изучению спиновых стекол, систем с нелокальными кулоновскими взаимодействиями и систем с тяжелыми фермионами была предложена расширенная теория динамического среднего поля (EDMFT) [4], позволяющая учитывать зарядовые и спиновые взаимодействия между электронами на соседних узлах. На сегодняшний день активно исследуются магнитные пленки, адатомные системы и материалы на основе графена, в которых также важен учет данного вида взаимодействий. Другой, не менее важной задачей теоретического описания материалов, является возможность рассмотреть поведение системы при смене фазового состояния, что невозможно в одноэлектронных подходах. Также более сложные электрон-электронные взаимодействия могут быть учтены в DMFT и ее расширенных версиях. В некоторых состояниях возможно получить аналитическое решение, но для изучения реальных материалов требуется численное решение моделей. В силу большой размерности решаемой задачи не менее важной проблемой, возникающей при разработке численных схем, является ограниченность расчетных ресурсов, таких как память и время выполнения расчета.

Целью диссертации является разработка программного алгоритма для численного решения расширенной модели Хаббарда с использованием метода точной диагонализации, а также его применение для изучения как реально синтезированных поверхностных наноматериалов с s и p электронами, так и модельных сильно коррелированных систем, которые могут быть воссозданы в экспериментах над ультрахолодными атомами в оптических решетках. Для достижения поставленной цели было необходимо решить следующие **задачи**:

1. Разработать численную схему решения уравнений расширенной теории динамического среднего поля на базе метода точной диагонализации с использованием дискретного бозонного резервуара в эффективной примесной модели.
2. При помощи разработанного метода построить фазовую диаграмму для модели Хаббарда, определенной на квадратной решетке, в широком диапазоне параметров одноузельных и межузельных кулоновских взаимодействий. Данная фазовая диаграмма позволит с единых

позиций анализировать свойства совершенно разных классов сильно коррелированных материалов и искусственно синтезируемых систем.

3. В рамках подхода EDMFT провести моделирование электронных свойств адатомных поверхностных систем на основе графена с учетом локальных и нелокальных кулоновских взаимодействий.

Научная новизна:

1. В рамках разработанного численного метода решения уравнений EDMFT впервые применен метод дискретного описания бозонного резервуара при решении эффективной примесной модели, что позволило создать расчетную схему, обладающую рядом преимуществ по сравнению с существующими. Во-первых, возможность проводить расчеты в режиме сильных корреляций вдали от границы фазового перехода металл-изолятор. Во-вторых, с помощью данного подхода становится возможным получать спектральные функции на реальных частотах, что позволяет проводить сравнение расчетных данных с экспериментальными без использования аналитического продолжения.
2. Определен минимально допустимый уровень дискретизации фермионного и бозонного резервуаров, позволяющий производить теоретические исследования методом точной диагонализации, при которых с хорошей точностью воспроизводятся результаты, полученные квантовым методом Монте-Карло.
3. В результате проделанной работы был предложен характер экранирования кулоновского отталкивания на узле в режиме изолятора, что раньше было невозможно из-за особенностей численных методов, основанных на расчете непрерывных энергетических спектров.
4. Впервые было показано, что учет корреляционных эффектов является важным и пренебрежимым при рассмотрении поверхностных *sp*-систем. Было получено, что основное состояние соединений C_2F и C_2H , определяемое при помощи приближения локальной электронной плотности как металлическое, при учете локальных корреляций при низких температурах является изоляторным.
5. Впервые была построена фазовая диаграмма, характеризующая изменение границы фазового перехода металл - изолятор при учете зарядо-

вых межузельных взаимодействий для систем, которые описываются расширенной моделью Хаббарда на треугольной решетке.

Практическая значимость. Результаты, представленные в данной диссертации, могут быть использованы при моделировании экспериментально синтезируемых систем: оксидов переходных металлов и поверхностных наносистем, характеризующихся сильными электронными корреляциями. Численная схема, описанная в данной работе, реализована в виде библиотеки. Расширенная теория динамического среднего поля станет отправной точкой для дальнейшего построения теорий, которые включают в себя пространственные корреляции, таких как метод дуальных бозонов [5].

Методология и методы исследования. В данной диссертационной работе, чтобы исследовать влияние нелокальных взаимодействий на электронные и магнитные свойства соединения, решалась расширенная модель Хаббарда, которая может быть представлена следующим гамильтонианом:

$$H = \sum_{ij\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} + \frac{1}{2} \sum_{ij} V_{ij} n_i n_j + \frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j, \quad (1)$$

здесь первое слагаемое описывает переход электронов между узлами решетки, второе – локальные взаимодействия на узле решетки, третье и четвертое – зарядовые и спиновые взаимодействия между узлами, соответственно. При большом количестве узлов получить численно решение невозможно, поэтому используются различные теории и приближения. В данной диссертационной работе рассматривались DMFT и EDMFT. Для численного решения уравнений указанных теорий были использованы метод точной диагонализации и квантовый метод Монте-Карло.

Основные положения, выносимые на защиту:

- Разработанный численный метод решения уравнений расширенной теории динамического среднего поля впервые позволил исследовать реальные материалы с *sp*-электронами, которые характеризуются значительными нелокальными кулоновскими взаимодействиями.
- Анализ спектральных функций показывает, что для описания зарядовых межузельных взаимодействий в двумерных физических системах необходимо не менее двух, а в случае обменных достаточно трех

эффективных уровней в бозонном резервуаре эффективной примесной модели расширенной теории динамического среднего поля.

- Определено, что при учете нелокального зарядового взаимодействия в двумерных физических системах экранирование локального кулоновского отталкивания нелинейно и в режиме изолятора мало относительно величины самого параметра.
- Решение реалистичных моделей, описывающих материалы C_2F и C_2H , показывает, что при учете электронных корреляций в рамках теории динамического среднего поля данные соединения являются изоляторами при низких температурах.

Достоверность полученных методических и расчетных результатов обеспечивается их внутренним согласием, непротиворечивостью современным представлениям физики и соответствием результатам предыдущих работ.

Апробация работы происходила на следующих конференциях всероссийского и международного уровней:

1. 9 международная конференция по компьютерной физике (Сингапур, 2015);
2. II Международная молодежная научная конференция «Физика. Технологии. Инновации. ФТИ – 2015» (Екатеринбург, Россия, 2015);
3. 12 встреча молодых ученых Европейского центра теоретической спектроскопии «Challenges in ab initio modelling of materials and molecules» (Париж, Франция, 2015);
4. Международный симпозиум и воркшоп «Electronic Structure Theory for the Accelerated Design of Structural Materials» (Москва, Россия, 2015);
5. XXXVI Международная зимняя школа физиков-теоретиков «Коуровка» (Екатеринбург, Россия, 2016);
6. Международная конференция «Graphene2016» (Генуя, Италия, 2016);
7. III Международная молодежная научная конференция «Физика. Технологии. Инновации. ФТИ – 2016» (Екатеринбург, Россия, 2016);
8. Симпозиум «Ab-initio based modeling of advanced materials» (Екатеринбург, Россия, 2016);

9. Международный воркшоп «Big Ideas in Quantum Matter» (Наймеген, Нидерланды, 2017);
10. Летняя школа по теоретической физике «Базис» (Москва, Россия, 2018).

Личный вклад. Содержание диссертации и основные положения, выносимые на защиту, отражают персональный вклад автора в опубликованные работы. Подготовка к публикации полученных результатов проводилась совместно с соавторами, в ряде работ вклад диссертанта был определяющим. Результаты первопринципного моделирования были предоставлены Руденко А.Н. (Университет Радбоуда Утрехтского, Нидерланды), все представленные расчеты СТQМС были выполнены Фридрихом Крином (Университет Гамбурга, Германия), разработка расчетного комплекса для учета нелокальных обменных взаимодействий проводилась совместно с Исаковым С.Н., цикл самосогласования реализован лично автором, все модельные расчеты были выполнены лично автором. Планирование теоретических исследований, анализ и обсуждение большинства результатов и подготовка к публикации происходили при участии научного руководителя, Мазуренко В.В., а также Исакова С.Н. и Лихтенштейна А.И.

Публикации. Материалы диссертационной работы опубликованы в 9 печатных работах, из них 2 - статьи в рецензируемых научных журналах, рекомендованных ВАК, 7 - тезисы докладов.

Содержание работы

Во **введении** обоснована актуальность диссертационной работы, сформулирована цель и аргументирована научная новизна исследований, показана практическая значимость полученных результатов, представлены выносимые на защиту научные положения.

В **первой главе** «Обзор методов моделирования электронной структуры сильно коррелированных материалов» представлено описание квантовых решеточных моделей, в частности расширенная модель Хаббарда, и теоретические подходы, описывающие их: теория динамического среднего поля (Dynamical Mean-Field Theory, DMFT), ее расширенная версия (Extended DMFT, EDMFT). Отдельное внимание уделяется рассмотрению численных методов решения эффективных примесных задач в контексте DMFT, исполь-

зованных в данной работе: квантовому методу Монте-Карло (Quantum Monte Carlo, QMC) и, в особенности, методу точной диагонализации.

Во второй главе «Разработка численной схемы для решения уравнений расширенной теории динамического среднего поля на основе метода точной диагонализации» описан программный алгоритм, представленный в данной работе.

В первой части главы описывается применение метода точной диагонализации в рамках EDMFT. Расширенная модель Хаббарда аппроксимируется эффективной примесной моделью, описываемой следующим гамильтонианом:

$$\begin{aligned}
H_{\text{imp}} = & \underbrace{\sum_{\sigma} \varepsilon_0 d_{\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} + U n_{0\uparrow} n_{0\downarrow}}_{\text{примесь}} + \underbrace{\sum_{k\sigma} (\mathcal{V}_k d_{\sigma}^{\dagger} f_{k\sigma} + h.c.) + \sum_{k,\sigma} \varepsilon_k f_{k\sigma}^{\dagger} f_{k\sigma}}_{\text{фермионный резервуар}} \\
& + \underbrace{\sum_p \Omega_p b_p^{\dagger} b_p + \sum_p \mathcal{W}_p \mathbf{O}(b_p^{\dagger} + b_p)}_{\text{бозонный резервуар}}, \quad (2)
\end{aligned}$$

где параметры соответствуют обозначениям, приведенным на Рис. 1. Первые три слагаемых представляют из себя эффективную модель Андерсона, применяемую в контексте DMFT, что подробно описано в работах [3; 6]. Последние два слагаемых гамильтониана (2) определяют бозонный резервуар. Оператор $\mathbf{O} = (\bar{n}_0, \bar{S}^z, \bar{S}^x, \bar{S}^y)$, где $\bar{n}_0 = \sum_{\sigma} (n_{0\sigma} - \langle n_{0\sigma} \rangle)$, $\bar{S}^{\nu} = S^{\nu} - \langle S^{\nu} \rangle$, $S^{\nu} = \sum_{\alpha\alpha'} (d_{\alpha}^{\dagger} \sigma_{\alpha,\alpha'}^{\nu} d_{\alpha'})$ (здесь α и α' - спиновые индексы, символом σ^{ν} обозначены матрицы Паули). Примесь описывает выделенный узел решетки, находя-

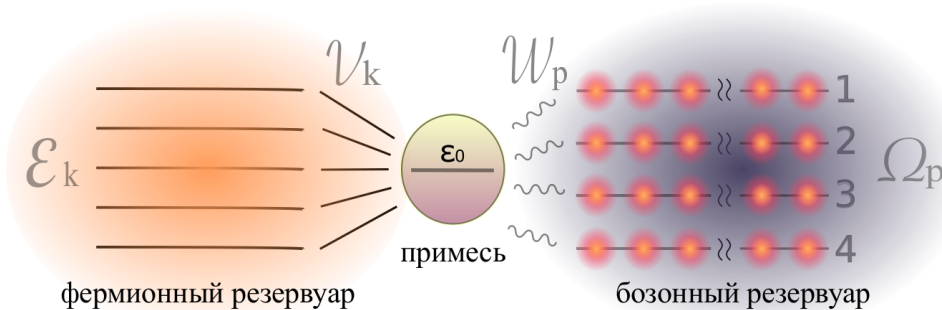


Рис. 1 — Схематическое представление эффективной примесной модели в расширенной теории динамического среднего поля. Здесь ε_k , ε_0 , Ω_p — энергетические уровни фермионного резервуара, примеси и бозонного резервуара, соответственно; $\mathcal{V}_k$, $\mathcal{W}_p$ — взаимодействие между примесью и эффективными уровнями фермионного и бозонного резервуаров, соответственно.

щийся в фермионном резервуаре, образованном электронами внешних оболочек окружающих атомов, а бозонный резервуар – флуктуации зарядовой или спиновой плотности в решетке. И фермионный, и бозонный резервуары на самом деле имеют непрерывный энергетический спектр. Для того, чтобы использовать метод точной диагонализации, их необходимо аппроксимировать конечным числом уровней. Фермионная $\Delta(i\omega_m)$ и бозонная $\Lambda(i\nu_m)$ гибридные функции в случае дискретного описания энергетических спектров могут быть представлены уравнениями (3) и (4), где $i\omega_m = (2m + 1)\pi/\beta$ и $i\nu_m = 2m\pi/\beta$ - фермионные и бозонные мацубаровские частоты соответственно.

$$\Delta(i\omega_m) \approx \sum_{k=1}^K \frac{|\mathcal{V}_k|^2}{i\omega_m - \varepsilon_k} \quad (3) \quad \Lambda(i\nu_m) \approx \sum_{p=1}^P \frac{2|\mathcal{W}_p|^2 \Omega_p}{(i\nu_m)^2 - \Omega_p^2} \quad (4)$$

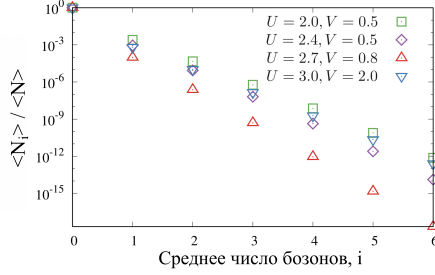
Базисные состояния для построения гильбертова пространства записываются следующим образом:

$$|\psi\rangle = \underbrace{|n_{b1}, n_{b2}, \dots, n_{bp}, \dots\rangle}_{\text{бозонная часть}} \otimes \underbrace{|n_0^\uparrow, n_{f1}^\uparrow, \dots, n_{fk}^\uparrow \dots, n_0^\downarrow, n_{f1}^\downarrow, \dots, n_{fk}^\downarrow, \dots\rangle}_{\text{фермионная часть}}, \quad (5)$$

где число заполнения n_{bp} бозонов на каждом эффективном уровне в резервуаре составляет $0 \leq n_{bp} \leq N_p$, N_p - максимальная заселенность бозонного уровня. Заселенность орбитали с индексом k в фермионном резервуаре, состоящем из K уровней, обозначена n_{fk} и принимает значения 1 или 0. Заселенность примесной орбитали обозначена n_0 . Чтобы рассчитать примесные функции Грина при помощи леманновского представления, необходимо получить собственные значения матрицы примесного гамильтониана. Благодаря температурной экспоненте, основной вклад в значения функции Грина вносят состояния с низкими энергиями, что позволяет ограничить спектр собственных значений низкоэнергетической частью. Для диагонализации гамильтониана применяется алгоритм Ланцоша [7]. Используя два этих фактора, время расчета может быть существенно сокращено.

В случае бозонного резервуара требуется ограничить максимальную заселенность уровней. Для этого было рассмотрено вероятностное распределение среднего числа бозонов на одном уровне (Рис. 2) в различных корреляционных режимах. В формулах (6) и (7) $|l\rangle$ является собственным вектором

примесного гамильтониана, $\mathcal{Z}$ - статистическая сумма, P - общее число эффективных уровней в бозонном резервуаре. Здесь производится селекция собственных векторов, таким образом, что среднее количество частиц на уровне равно i . Количество частиц на бозонном уровне рассчитывается по формуле $2^s - 1$, где s - количество разрядов в двоичной системе счисления, необходимых для кодирования числа. Учитывая это, в результате определено, что достаточным является семь частиц на уровне.



$$\langle N \rangle = \frac{1}{\mathcal{Z}P} \sum_l \sum_{p=1}^P \langle l | b_p^\dagger b_p | l \rangle e^{-\beta E_l} \quad (6)$$

$$\langle N_i \rangle = \frac{1}{\mathcal{Z}P} \sum_{l_i} \sum_{p=1}^P \langle l_i | b_p^\dagger b_p | l_i \rangle e^{-\beta E_{l_i}} \quad (7)$$

Рис. 2 — Вероятностное распределение $\langle N_i \rangle / \langle N \rangle$ для конфигурации бозонного резервуара со средним числом бозонов на уровне i . Полученные зависимости соответствуют экспоненциальному распределению. Величины параметров взаимодействия приведены в эВ.

Во второй части главы проанализирована корректность приближений дискретизации фермионного и бозонного резервуаров при решении эффективной примесной модели методом точной диагонализации. Для этого предварительно производилось решение расширенной модели Хаббарда при помощи EDMFT на основе квантового метода Монте-Карло на непрерывном времени (Continuous-time QMC, CTQMC). После получения согласованного решения выполнялась параметризация гибридизационных функций фермионного и бозонного резервуаров. Полученные параметры гибридизации далее использовались при решении эффективной примесной задачи методом точной диагонализации. В результате производилось сравнение одночастичной и двухчастичной функций Грина, полученных двумя указанными методами, на мнимых и действительных частотах (в случае CTQMC использовалось аналитическое продолжение, рассчитанное методом максимальной энтропии). Эффективные примесные задачи, учитывающие зарядовые и спиновые флуктуации, рассматривались отдельно. В случае зарядовых флуктуаций было выявлено, что для определения фазового состояния системы достаточно одного эффективного уровня в бозонном резервуаре и пяти в фермионном. Однако для получения решения, численно близкого к CTQMC во всех корреляцион-

ных режимах, а также вблизи фазового перехода, минимальное необходимое количество эффективных уровней в бозонном резервуаре равно двум. При рассмотрении спиновых флуктуаций достаточными являются три эффективных уровня в бозонном резервуаре и четыре - в фермионном.

В третьей части главы представлен цикл самосогласования для решения уравнений EDMFT, адаптированный для использования метода точной диагонализации. Под согласованным понимается такое решение, в котором функции Грина эффективной примесной модели с заданной точностью воспроизводят функции Грина решетной модели. В отличие от цикла самосогласования для DMFT, построенном на сравнении только одночастичной функции Грина, в случае EDMFT в согласовании участвует также двухчастичная функция Грина (зарядовая или спиновая восприимчивости в зависимости от рассматриваемого взаимодействия в расширенной модели Хаббарда).

В четвертой части приведены некоторые особенности, выявленные при проведении численных расчетов.

В третьей главе *«Изучение влияния межузельных взаимодействий на электронные свойства модельной системы в расширенной модели Хаббарда на квадратной решетке»* рассматривается применимость подхода численного решения уравнений EDMFT с использованием метода точной диагонализации в различных режимах локальных корреляций.

В первой части главы представлена и подробно проанализирована диаграмма фазовых переходов (Рис. 3) в зависимости от величины кулоновских взаимодействий между узлами V и на узле U в расширенной модели Хаббарда. Для проверки результатов, полученных методом точной диагонализации, на Рис. 3(а) также приведены графики, полученные ранее в работах [8] и [9], в которых для решения эффективной примесной модели использовался метод СТQМС. Было выявлено, что в методе точной диагонализации сходимость уравнений к самосогласованному решению становится медленнее в тех же областях, что и при использовании СТQМС. На Рис. 3(б) переход из ферми-жидкостного состояния был изучен более детально. Расположение границ выявляет типичную сосуществующую область фазовых переходов первого рода металл-изолятор. Также существует узкая полоса в центральной области диаграммы, соответствующая изоляторному решению, расположенная между фазой зарядового упорядочения и ферми-жидкостным состоянием.

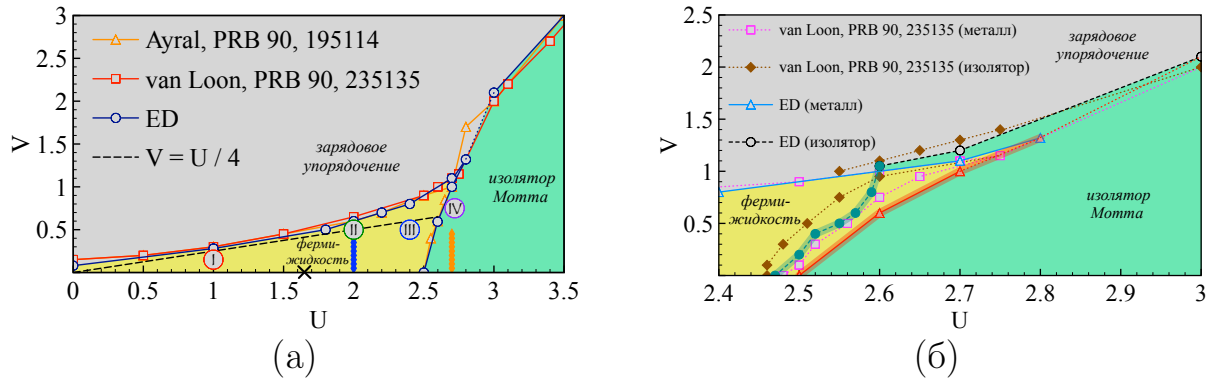


Рис. 3 — Фазовая диаграмма расширенной модели Хаббарда в плоскости $U - V$ (а) общий вид (кругами обозначена фазовая граница, полученная методом точной диагонализации), (б) увеличенное изображение (синим обозначена граница перехода в фазу зарядового упорядочения; красная граница справа соответствует переходу в состояние моттовского изолятора; пунктирной черной линией обозначена граница с фазой зарядового упорядочения, зеленой линией — с фазой ферми-жидкости. Сплошными линиями обозначены переходы, инициированные в фазе ферми-жидкости, пунктирной — изолятора. Утолщенные линии соответствуют границам фазового перехода, полученным при четном количестве орбиталей в фермионном резервуаре).

ем. Данный факт может быть интерпретирован как косвенное доказательство сосуществования фаз изолятора Мотта и зарядового упорядочения, но проверка перехода первого рода между данными фазами невозможна, так как серия расчетов не может быть начата в фазе зарядового упорядочения. Было выявлено, что в расчетах при помощи метода точной диагонализации сосуществующие области ферми-жидкости и изолятора Мотта сдвинуты в область несколько больших значений U по сравнению с результатами, полученными СТQМС, представленными в [9]. Чтобы получить оценку ошибки дискретизации, была рассчитана фазовая граница между металлической и изоляторной фазами также с четным числом орбиталей в фермионном резервуаре, равного четырем. Все прочие границы были получены с использованием пяти. Данная оценка приведена как утолщенные зеленая (изолятор Мотта – ферми-жидкость) и красная (ферми-жидкость – изолятор Мотта) линии на Рис. 3(б). Однако, переход ферми-жидкость – изолятор Мотта при $V = 0$, полученный из DCA (Dynamical Cluster Approximation) расчетов [10], имеет значение приблизительно $U_c \cong 1.6$ эВ, показывая то, что ошибка аппроксимации, применяемая в EDMFT, намного больше, чем дополнительная ошибка дискретизации. Несмотря на то что изучение фазы зарядового упорядочения при помощи разработанной расчетной схемы невозможно, граница перехода, как уже было сказано, может быть определена. Физически наличие данного состояния обусловлено доминирующим межузельным кулоновским взаимо-

действием. Увеличивая параметр межузельного взаимодействия V , при некотором его значении электронам более выгодно образовать две подрешетки: полностью заполненную и пустую, – что приводит к нарушению симметрии.

Во второй части главы производится оценка и рассматривается классификация нелокальных кулоновских взаимодействий для различных реальных материалов в зависимости от величин одноузельного U и межузельного V кулоновских взаимодействий (Рис. 4). Расширенная модель Хаббарда может применяться для описания свойств совершенно разных классов СКС. Все указанные системы описываются моделями разной геометрии: квадратной, гексагональной или треугольной решеткой, но их связывает наличие значительных межузельных кулоновских корреляций. В простейшем случае для каждого

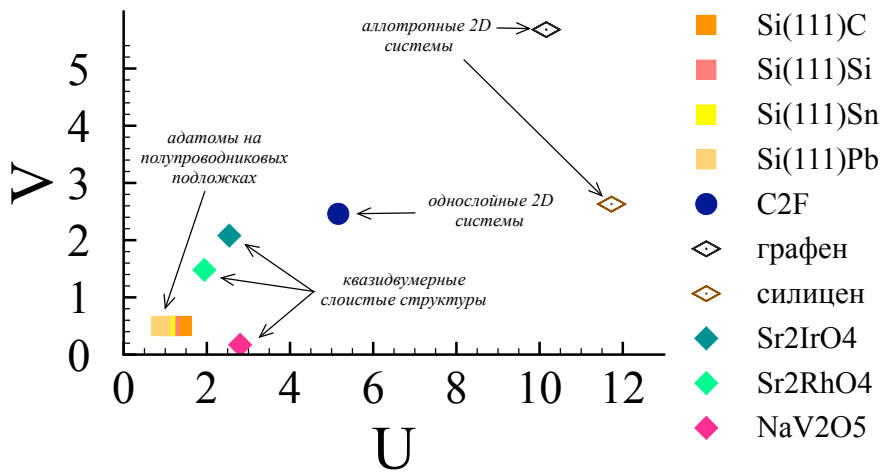


Рис. 4 — Классификация соединений, в которых наблюдаются сильные нелокальные кулоновские взаимодействия.

материала элементы матрицы кулоновского взаимодействия могут быть рассчитаны через интегралы по волновым функциям. Кроме того при помощи подхода cRPA (constrained Random Phase Approximation) [11; 12] учитывается экранирование взаимодействий, определенных для состояния на уровне Ферми, всеми другими состояниями электронного спектра. В случае решеточных моделей используется базис функций Ванье. Построение квантовой решеточной задачи в данном базисе подробно описано в тексте работы. Сильная делокализация функций Ванье приводит к их большему взаимному перекрытию, и, как следствие, к большему значению параметра межузельного кулоновского взаимодействия V . Величина же локального взаимодействия U , напротив, увеличивается, когда функция Ванье локализована на одном узле. Это подтверждается закономерностью, наблюдаемой на диаграмме. Исполни-

зование максимально локализованных функций Ванье в качестве базисных при построении решеточной модели позволяет применять DMFT и ее расширения для широкого спектра сильно коррелированных материалов. Однако, создание теоретических моделей так или иначе сводится к рассмотрению идеализированных систем.

Несмотря на постоянное совершенствование используемых теоретических подходов для получения полноценного инструмента необходимы проверки выдвигаемых гипотез экспериментально. Это приводит к необходимости синтезировать материал с заданными свойствами, что является на текущий момент колоссально сложной задачей. Для экспериментального изучения квантовых явлений в реальных материалах необходимо использовать квантовый симулятор. В качестве квантовых симуляторов активно изучаются системы ультрахолодных атомов в оптических решетках [13; 14]. Оптическую решетку можно представить как периодический «ландшафт» потенциальной энергии, получаемый в результате образования стоячей волны вследствие интерференции. Геометрия решетки определяется конфигурацией лучей, а глубина регулируется интенсивностью лазера. На сегодняшний день выполнены основополагающие эксперименты (см., напр., [15—17]), подтверждающие возможность моделировать свойства твердых тел, используя атомные газы. Данный факт показывает, что расширенная модель Хаббарда может быть экспериментально реализована в данного рода искусственно синтезируемых системах и открывает возможность изучать квантовые эффекты и проверять теоретические гипотезы.

В третьей части главы рассматривается экранирование локального кулоновского отталкивания при учете межузельного зарядового взаимодействия. Анализ посредством вариационного принципа предсказывает в простом приближении механизм линейного экранирования, где результирующее взаимодействие представляется как $U^* = U - V$. С данной точки зрения, межузельное взаимодействие способствует созданию парной заселенности и, следовательно, выигрыш U в потенциальной энергии посредством уменьшения потенциальной энергии V на соседнем узле. Кроме того, эффективность экранирования зависит от физического режима и экранированное взаимодействие должно определяться как $U^* = U - \alpha V$. Ренормализующий фактор α стремится к 1 с увеличением хаббардовского отталкивания U , то есть, согласно

вариационному принципу, максимальное экранирование реализуется в режиме изолятора Мотта.

С другой стороны в EDMFT экранированное взаимодействие $U(i\nu) = U + \Lambda(i\nu)$, где $\Lambda(i\nu)$ является динамическим взаимодействием (бозонной гибридационной функцией), возникающим вследствие наличия эффективно-го бозонного резервуара в примесной модели. Экранирование квадратично подавляется при малых значениях нелокального кулоновского взаимодействия и типичный энергетический масштаб экранирования определяется величиной локальных зарядовых возбуждений. Зарядовые возбуждения сдвигаются в область высоких энергий, в результате получается большая частота экранирования порядка запрещенной зоны.

Чтобы сравнить эффекты экранирования в фазах ферми-жидкости и изолятора Мотта, значение динамического взаимодействия $\Lambda(i\nu)$ при $i\nu_0 = 0$ как функция V изображено в левой части Рис. 5. В металлической фазе при $U = 2.0$ эВ поведение $\Lambda(i\nu_0)$ не согласуется с вариационной оценкой. Это расхождение еще более ощутимо для экранирования в изоляторном ре-

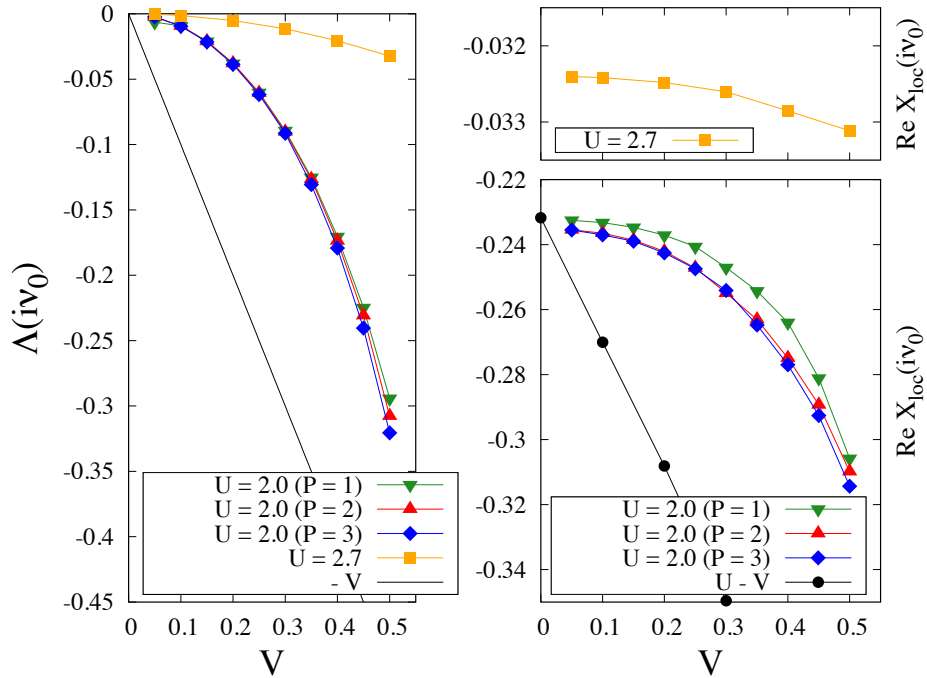


Рис. 5 — Левый график: значение динамического взаимодействия $\Lambda(i\nu_0 = 0)$ как функция V в металлической фазе (обозначены треугольниками и ромбами) и в фазе изолятора (обозначены желтыми квадратами в соответствии с символикой, использованной на Рис. 3(а)). Линия $-V$ характеризует статическое экранирование согласно упрощенной оценке вариационного принципа, представленной в работе [18]. Верхний правый график: локальная восприимчивость $X_{\text{loc}}(i\nu_0)$ в фазе изолятора.

жиме при $U = 2.7$ эВ, где $\Lambda(i\nu_0)/(-V) \ll 1$. В отличие от фазы ферми-жидкости, где низкоэнергетические зарядовые возбуждения служат медиатором для значительных экранирующих эффектов V на графике плотности состояний, зарядовые возбуждения в фазе изолятора смещаются в область высоких энергий.

Предполагается, что EDMFT недооценивает экранирование в фазе изолятора при половинном заполнении: динамически экранированное взаимодействие в локальной примесной задаче EDMFT учитывает лишь средний эффект нелокального потенциала, создаваемого зарядами на соседних узлах решетки на саму примесь. Следовательно, когда на примеси создается двойное заполнение, локальная часть задачи EDMFT полностью учитывает прирост потенциальной энергии на примеси из-за слабо экранированного локального взаимодействия, но одновременно игнорирует уменьшение потенциальной энергии за счет создания вакансии на соседнем участке. Этот механизм, однако, является физической интерпретацией вариационного принципа и приводит в первом приближении к экранированию, которое является линейным по нелокальному потенциалу. Предполагается, что EDMFT игнорирует этот эффект и не предсказывает линейный характер экранирования ни в фазе ферми-жидкости, ни в фазе изолятора Мотта.

В четвертой части главы рассмотрено влияние учета нелокального кулоновского взаимодействия на собственно-энергетическую часть в случае нескольких координационных сфер. Было получено, что при увеличении количества учтенных координационных сфер, значение собственной энергии уменьшается. Данное поведение может быть объяснено дополнительным экранированием локального кулоновского параметра U . Таким образом, можно заключить, что учет большего количества координационных сфер, приводит к ослаблению локальных электронных корреляций.

В пятой части главы рассматривается влияние учета нелокальных спиновых взаимодействий на одночастичные и двухчастичные функции Грина. В результате было выявлено, что система имеет тенденцию к переходу в изоляторное состояние, что определялось по уменьшению спектрального веса на уровне Ферми на графике функции плотности состояний. Также были обнаружены низкоэнергетические пики на графиках восприимчивости, соот-

ветствующие спиновым возмущениям, которые отсутствуют на графиках, получаемых при помощи DMFT.

В четвертой главе «*Моделирование поверхностных sp -систем при помощи расширенной теории динамического среднего поля*», используя разработанную численную схему, рассматривается влияние учета локальных электронных корреляций и нелокальных кулоновских взаимодействий на электронные свойства поверхностных наносистем на основе графена. Основной целью данной главы является моделирование электронных свойств фторированного и гидрогенизированного графена. Система C_2F , представляющая монослой фтора на графене, вызывает особый интерес, так как была реализована в эксперименте [19].

С появлением возможности манипулировать отдельными атомами при помощи технологии сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) возрос интерес к адатомным системам на подложках, как к перспективным материалам в области проектирования новых логических устройств или атомной памяти. Ярким примером могут служить именно поверхностные наносистемы с s и p электронами. В данных соединениях возникает уникальная ситуация, когда, согласно теоретическим расчетам при помощи приближения локальной плотности (Local Density Approximation, LDA), наблюдается четко отделенная узкая энергетическая зона на уровне Ферми с половинным заполнением. Ранее подобная картина наблюдалась исключительно у соединений, включающих элементы с частично заполненной d -оболочкой. В свою очередь системы с sp -электронами характеризуются гораздо более сильной гибридизацией атомных состояний, чем в случае $3d$ соединений, вследствие большей пространственной протяженности волновых функций. Учитывая это, формирование узкой отделенной зоны на уровне Ферми представляется необычным. Функции Ванье, описывающие состояния на уровне Ферми, поверхностных структур с sp -электронами сильно делокализованы. При попытке использовать одноэлектронные методы, возникает вопрос, каким именно образом должен быть приложен потенциал U , когда состояния не локализованы на атоме. Одним из вариантов решения данной проблемы является описание решеточной задачи на модельном уровне.

В первой части главы рассмотрены особенности электронной структуры фторированного и гидрогенизированного графена.

Во второй части главы рассмотрено решение уравнений DMFT для случая треугольной решетки при половинном заполнении. Первым разумным шагом является проверка расчетной схемы и сравнение получаемых данных с предыдущими результатами. Для этого был воспроизведен переход металл-изолятор Мотта при половинном заполнении для конечной температуры при параметрах, аналогичных представленным в работе [20]. Можно сделать вывод, что результаты, полученные методом точной диагонализации, качественно согласуются с данными QMC при рассмотрении системы вне окрестности фазового перехода. Отдельно стоит отметить тот факт, что в случае QMC использовался алгоритм, построенный на дискретном времени; это также может играть роль в образовании пика спектральной функции на уровне Ферми при параметрах вблизи фазового перехода.

В третьей части главы рассматривалось влияние учета локальных электрон-электронных корреляций и нелокальных кулоновских взаимодействий при описании систем C_2F и C_2H . В результате проведенного исследования было выявлено, что модели, игнорирующие многоэлектронные эффекты, описывают такие соединения некорректно. При рассмотрении поверхностных графеновых структур C_2F и C_2H при помощи DMFT данные соединения определяются как изоляторные, в то время как LDA расчет предсказывает их металлическое поведение. Несмотря на то что температуры расчетов LDA ($T = 0$ эВ) и DMFT ($T = 1/\beta = 0.01$ эВ) отличаются, температурными эффектами в данном сравнении можно пренебречь, поскольку ее величина существенно меньше, чем использованные величины интегралов перескока и взаимодействий.

Чтобы рассмотреть влияние нелокальных зарядовых взаимодействий на формирование особенностей электронного спектра C_2F была численно решена расширенная модель Хаббарда на треугольной решетке, в которой рассматривалась только первая координационная сфера. В результате было установлено, что учет данных взаимодействий в *sp*-системах важен, поскольку приводит к сужению запрещенной зоны.

Также была получена фазовая граница металл – изолятор для расширенной модели Хаббарда на треугольной решетке и проведено сравнение с данными, полученными при решении аналогичной решеточной задачи методом GW+DMFT [21] (Рис. 6). Расчеты проводились с учетом нелокальных

зарядовых взаимодействий между ближайшими соседями в пределах первой координационной сферы при половинном заполнении. Из диаграммы видно, что в системе наблюдается тенденция к усилению делокализации электронов, что выражается смещением границы в область больших значений локальных кулоновских взаимодействий U (зеленая штрих-пунктирная линия). Для сравнения на графике приведена также граница перехода металл – изо-

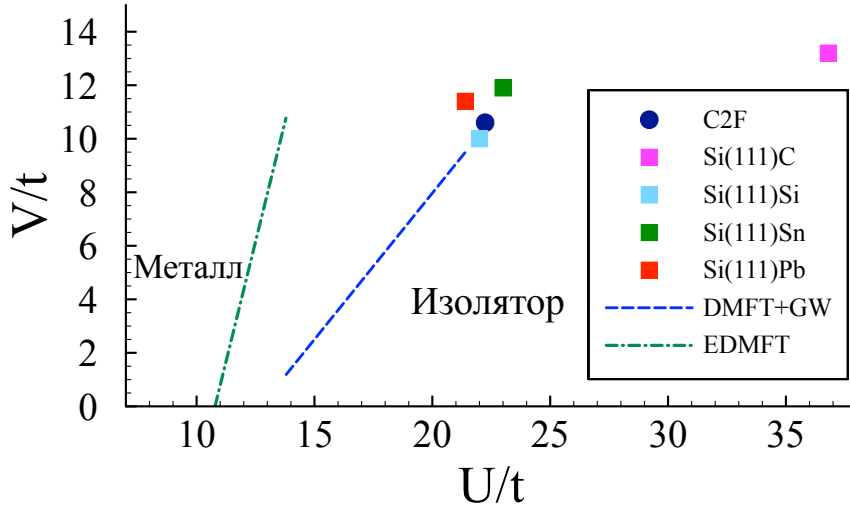


Рис. 6 — Фазовая диаграмма в плоскости $U - V$ расширенной модели Хаббарда на треугольной решетке при половинном заполнении. Штрих-пунктирная зеленая линия обозначает переход, полученный решением уравнений EDMFT, для C_2F соединения с учетом интегралов перескока для трех координационных сфер и кулоновского взаимодействия с соседями в пределах первой. Штрихованная синяя линия представляет границу фазового перехода, полученную методом GW+DMFT для поверхностных структур адатомов C, Si, Sn, Pb на поверхности Si(111) [21].

лятор для Si(111): {C, Si, Sn, Pb} (обозначена синей пунктирной линией), полученная методом GW+DMFT [21]. Атомная структура рассмотренных соединений: адатомов на листе графена и адатомов на подложке, — является принципиально разной, но на модельном уровне в обоих случаях решалась одинаковая задача. Поэтому наблюдаемая разница между полученными границами возникает вследствие использования разных аппроксимаций и численных методов. Основное отличие EDMFT и GW+DMFT заключается в том, что в первом подходе учитываются только нелокальные взаимодействия, а во втором — в том числе нелокальные корреляции между электронами. В случае EDMFT использовался метод точной диагонализации, а в GW+DMFT — СТQMC, другими словами, можно было бы ожидать эффект вследствие дискретизации энергетических спектров. Однако, как было показано в предыдущей главе, ошибка численного метода намного меньше ошибки теоретической

аппроксимации и не может принести достаточный вклад, чтобы принципиально изменить вид фазовой границы.

Вследствие того, что в разработанной численной схеме использовалась эффективная примесная модель с одним элементом, а не кластером узлов, нелокальные корреляции в рамках такой реализации не могут быть учтены. Таким образом, можно предположить, что в рассмотренных *sp*-структурах ощутимый вклад также вносят нелокальные корреляции между электронами. Данный результат является стимулом для дальнейшего развития разработанной численной схемы.

В заключении приведены основные результаты работы:

1. Был разработан численный подход для решения уравнений расширенной теории динамического среднего поля, основанный на методе точной диагонализации, что позволило описывать сильно коррелированные системы в широком диапазоне модельных параметров.
2. Сравнение с данными, полученными квантовым методом Монте-Карло показало, что разработанная схема устойчива во всех корреляционных режимах и дает качественно и количественно верный результат. Анализ дискретизации бозонного резервуара в эффективной примесной модели показал, что минимальное необходимое количество эффективных уровней составляет не менее двух при рассмотрении зарядовых взаимодействий, и три для случая обменных взаимодействий.
3. Было исследовано влияние нелокальных зарядовых и обменных взаимодействий на электронные свойства модельной системы, описываемой расширенной моделью Хаббарда, определенной на квадратной решетке. В случае рассмотрения межузельных кулоновских взаимодействий наблюдается тенденция к сохранению металлического поведения системы и, наоборот, при учете обменных, - к более изоляторному. В обоих случаях наблюдаются низкоэнергетические возмущения в функции восприимчивости системы, что отражает важность учета нелокальных взаимодействий в системе.
4. При помощи разработанной схемы была решена задача описания зарядовых нелокальных взаимодействий в расширенной модели Хаббарда, определенной на треугольной решетке, при половинном заполнении. В результате была построена граница фазового перехода металл – изо-

лятор с учетом зарядовых взаимодействий с ближайшими соседями в пределах первой координационной сферы.

5. С помощью предложенного подхода стало возможным проведение реалистичного моделирования электронных свойств кристаллов и поверхностных наносистем при конечных температурах с учетом межузельных зарядовых и спиновых взаимодействий.

Рекомендации и перспективы дальнейшей разработки темы. В дальнейшем результаты данной диссертационной работы могут быть использованы при исследовании электронных и магнитных свойств поверхностных наносистем с сильными электрон-электронными корреляциями путем проведения современных численных экспериментов в рамках расширенной теории динамического среднего поля. Существенная экономия необходимых вычислительных ресурсов и расчетного времени характеризует метод точной диагонализации как достойный аналог квантовому методу Монте-Карло, позволяющий описывать системы в режимах, где использование СТQМС затруднено. Наилучшие результаты могут быть получены при использовании данных расчетных методов совместно. Выводы, сделанные относительно поверхностных наносистем, рассмотренных в данной работе, могут быть полезными для дальнейшего исследования экспериментально наблюдаемых особенностей соединений этого класса, способствуя развитию технологий в области хранения и обработки информации.

Основное содержание диссертации опубликовано в следующих работах:

Статьи, опубликованные в рецензируемых научных журналах и изданиях, определенных ВАК:

1. Medvedeva D. S. Role of direct exchange and Dzyaloshinskii-Moriya interactions in magnetic properties of graphene derivatives: C_2F and C_2H / Mazurenko, V. V., Rudenko, A. N., Nikolaev, S. A., Medvedeva, D. S., Lichtenstein, A. I. and Katsnelson, M. I. // Phys. Rev. B. - 2016. - Dec. - Vol. 94, issue 21.- P. 214411.
2. Medvedeva D. S. Exact diagonalization solver for extended dynamical mean-field theory / Medvedeva D.S., Isakov S.N., Krien F., Mazurenko V. V., Lichtenstein A. I. // Phys. Rev. B. - 2017. - Dec. - Vol. 96, issue 23. - P. 235149.

Другие публикации:

1. Medvedeva D.S. Hund's coupling effects in metallic surface nanostructures: Fe/Pt(111) / Medvedeva D.S., Isakov S.N. // Proceeding of the 9th International Conference on Computational Physics. - Singapore, 2015. - С. 207 (0.125 п.л. / 0.120 п.л.).

2. Медведева Д.С. Влияние внутриатомного взаимодействия на дифференциальную проводимость Co/Pt(111) / Медведева Д.С., Исаков С.Н. // Сборник научных трудов Второй Международной молодежной научной конференции «Физика. Технологии. Инновации. ФТИ-2015». - Екатеринбург, 2015. - С. 60 (0.125 п.л. / 0.120 п.л.).
3. Medvedeva D.S. Transversal orbital-selective conductance of Co/Pt(111) / Medvedeva D.S., Isakov S.N. // Сборник научных трудов 12ой встречи молодых ученых «Challenges in ab initio modelling of materials and molecules». - Париж, 2015. - С. 70 (0.125 п.л. / 0.120 п.л.).
4. Medvedeva D.S. Influence of intra-atomic interaction on differential conductance of Co/Pt(111) / Medvedeva D.S., Isakov S.N., Mazurenko V.V. // Proceeding of International Symposium and Workshop «Electronic Structure Theory for the Accelerated Design of Structural Materials». - Москва, 2015. - С. 81 (0.125 п.л. / 0.120 п.л.).
5. Медведева Д.С. Разработка численной схемы для решения уравнений расширенной теории динамического среднего поля / Медведева Д.С., Исаков С.Н., Мазуренко В.В., Лихтенштейн А.И. // Сборник научных трудов международной зимней школы физиков-теоретиков «КОУРОВКА-XXXV». - Верхняя Сысерть, 2016. - С. 64 (0.125 п.л. / 0.120 п.л.).
6. Medvedeva D.S. Calculation scheme based on the extended equations of DMFT / Medvedeva D.S., Isakov S.N., Mazurenko V.V. // Сборник научных трудов Третьей Международной молодежной научной конференции «Физика. Технологии. Инновации. ФТИ-2016 ». - Екатеринбург, 2016. - С.190 (0.125 п.л. / 0.120 п.л.).
7. Medvedeva D.S. Calculation scheme based on the extended equations of DMFT for square and triangular lattices / Medvedeva D.S., Isakov S.N., Mazurenko V.V. // Proceeding of AMM-2016 «Ab-initio based modeling of advanced materials». - Ekaterinburg, 2016. - С. 55 (0.125 п.л. / 0.120 п.л.).

Список цитируемой литературы

1. Anisimov V., Izumov Y. Electronic structure of strongly correlated material. — 2010.
2. Electron correlations in narrow energy bands // Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences. — 1963. — Vol. 276, no. 1365. — Pp. 238–257.
3. Dynamical mean-field theory of strongly correlated fermion systems and the limit of infinite dimensions / A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, M. J. Rozenberg // Rev. Mod. Phys. — 1996. — Jan. — Vol. 68, issue 1. — Pp. 13–125.
4. Sun P., Kotliar G. Extended dynamical mean-field theory and GW method // Phys. Rev. B. — 2002. — Aug. — Vol. 66, issue 8. — P. 085120.

5. Rubtsov A., Katsnelson M., Lichtenstein A. Dual boson approach to collective excitations in correlated fermionic systems // *Annals of Physics*. — 2012. — Vol. 327, no. 5. — Pp. 1320–1335.
6. Electronic structure calculations with dynamical mean-field theory / G. Kotliar, S. Y. Savrasov, K. Haule, V. S. Oudovenko, O. Parcollet, C. A. Marianetti // *Rev. Mod. Phys.* — 2006. — Aug. — Vol. 78, issue 3. — Pp. 865–951.
7. Lanczos. An iteration method for the solution of the eigenvalue problem of linear differential and integral operators // *Journal of Research of the National Bureau of Standards*. — 1950. — Vol. 45, issue 5.
8. Ayral T., Biermann S., Werner P. Screening and nonlocal correlations in the extended Hubbard model from self-consistent combined *GW* and dynamical mean field theory // *Phys. Rev. B*. — 2013. — Mar. — Vol. 87, issue 12. — P. 125149.
9. Beyond extended dynamical mean-field theory: Dual boson approach to the two-dimensional extended Hubbard model / E. G. C. P. van Loon, A. I. Lichtenstein, M. I. Katsnelson, O. Parcollet, H. Hafermann // *Phys. Rev. B*. — 2014. — Dec. — Vol. 90, issue 23. — P. 235135.
10. Gull E., Parcollet O., Millis A. J. Superconductivity and the Pseudogap in the Two-Dimensional Hubbard Model // *Phys. Rev. Lett.* — 2013. — May. — Vol. 110, issue 21. — P. 216405.
11. Frequency-dependent local interactions and low-energy effective models from electronic structure calculations / F. Aryasetiawan, M. Imada, A. Georges, G. Kotliar, S. Biermann, A. I. Lichtenstein // *Phys. Rev. B*. — 2004. — Ноябрь. — Т. 70, вып. 19. — С. 195104.
12. Calculations of Hubbard U from first-principles / F. Aryasetiawan, K. Karlsson, O. Jepsen, U. Schönberger // *Phys. Rev. B*. — 2006. — Сентябрь. — Т. 74, вып. 12. — С. 125106.
13. Bloch I., Dalibard J., Nascimbène S. Quantum simulations with ultracold quantum gases // *Nature Physics*. — 2012. — Апрель. — Vol. 8. — P. 267. — Review Article.
14. Ultracold atomic gases in optical lattices: mimicking condensed matter physics and beyond / M. Lewenstein, A. Sanpera, V. Ahufinger, B. Damski, A. Sen(De), U. Sen // *Advances in Physics*. — 2007. — Vol. 56, no. 2. — Pp. 243–379.
15. Martiyanov K., Makhalov V., Turlapov A. Observation of a Two-Dimensional Fermi Gas of Atoms // *Phys. Rev. Lett.* — 2010. — Июль. — Vol. 105, issue 3. — P. 030404.
16. Metallic and Insulating Phases of Repulsively Interacting Fermions in a 3D Optical Lattice / U. Schneider, L. Hackermüller, S. Will, T. Best, I. Bloch, T. A. Costi, R. W. Helmes, D. Rasch, A. Rosch // *Science*. — 2008. — Vol. 322, no. 5907. — Pp. 1520–1525.
17. Site-resolved imaging of a fermionic Mott insulator / D. Greif, M. F. Parsons, A. Mazurenko, C. S. Chiu, S. Blatt, F. Huber, G. Ji, M. Greiner // *Science*. — 2016. — Vol. 351, no. 6276. — Pp. 953–957.

18. Optimal Hubbard Models for Materials with Nonlocal Coulomb Interactions: Graphene, Silicene, and Benzene / M. Schüler, M. Rösner, T. O. Wehling, A. I. Lichtenstein, M. I. Katsnelson // Phys. Rev. Lett. — 2013. — July. — Vol. 111, issue 3. — P. 036601.
19. Atomically resolved imaging of highly ordered alternating fluorinated graphene / Reza J. Kashtiban, M Adam Dyson, Rahul R. Nair, Recep Zan, Swee L. Wong, Quentin Ramasse, Andre K. Geim, Ursel Bangert, Jeremy Sloan // Nat. Comm. — 2014. — Vol. 5.
20. Aryanpour K., Pickett W. E., Scalettar R. T. Dynamical mean-field study of the Mott transition in the half-filled model on a triangular lattice // Phys. Rev. B. — 2006. — Aug. — Vol. 74, issue 8. — P. 085117.
21. Long-Range Coulomb Interactions in Surface Systems: A First-Principles Description within Self-Consistently Combined *GW* and Dynamical Mean-Field Theory / P. Hansmann, T. Ayral, L. Vaugier, P. Werner, S. Biermann // Phys. Rev. Lett. — 2013. — Apr. — Vol. 110, issue 16. — P. 166401.