

Weyl-Semimetall auf dem Pyrochlogitter

Christoph Berke

Geboren am: 15.3.1990 in Bergisch Gladbach

Master-Arbeit

zur Erlangung des akademischen Grades

Master of Science (M.Sc.)

Erstgutachter

Prof. Dr. Carsten Timm

Zweitgutachter

Prof. Dr. Matthias Vojta

Eingereicht am: 29. September 2016

Zusammenfassung

Die Untersuchung topologischer Phasen gehört zu den vielfältigsten Forschungsfeldern moderner Festkörperphysik. In den letzten Jahren ist die Klassifizierung topologischer Phasen ohne Bandlücke in den Fokus großer Aufmerksamkeit gerückt. Eine solche topologische Phase ist das Weyl-Semimetall. In dessen Brillouin-Zone kreuzen sich nicht-entartete Leitungs- und Valenzbänder linear an isolierten Punkten. Diese Kreuzungspunkte sind topologisch geschützt und sorgen für eine Vielzahl interessanter Eigenschaften, etwa den unkonventionellen Fermi-Arcs auf der Oberfläche. Die Stabilität der Phase macht sie für zahlreiche Anwendungen, von Quantencomputern bis hin zu elektronischen Bauteilen, interessant. In dieser Arbeit wird ein Modell für die Materialklasse der Pyrochloriridate untersucht. Für dieses ist die Existenz einer Weyl-Phase vorhergesagt worden. Das Phasendiagramm des Modells wird berechnet. Neben dem Weyl-Semimetall werden unter anderem ein starker topologischer Isolator, ein topologisches Semimetall 2. Art und verschiedene magnetische Ordnungen gefunden. In der Weyl-Semimetallphase werden die Oberflächenzustände für verschiedene Geometrien untersucht. Für niedrigere Elektronendichten wird eine Vielzahl neuer magnetischer Ordnungen gefunden. Anschließend werden Instabilitäten der Weyl-Phase untersucht. Da die Weyl-Punkte topologisch stabil sind, stellt sich die Frage, wie das Öffnen von Bandlücken möglich ist. Durch Ladungsdichtewellen können Weyl-Punkte, die zuvor weit entfernt waren, in der neuen Brillouin-Zone nahe beieinander landen. Es wird untersucht, ob dadurch paarweise Annihilationen möglich sind und eine Bandlücke öffnet. Ein solches Verhalten wird nicht beobachtet. Deshalb wird weiterhin untersucht, welche Mechanismen die Ausbildung von Ladungsdichtewellen verhindern. Unter anderem bilden sich eindimensionale Fermi-Linie, die auch für große Amplituden der Ladungsdichtewelle ein Öffnen der Bandlücke verhindern.

Abstract

The study of topological phases of matter is among the most active research fields in modern solid state physics. Over the last couple of years, there has been growing interest in the topological classification of gapless systems. One example of a gapless system, with defining topological properties, is the Weyl semimetal (TWS). In Weyl semimetals, conduction and valence bands touch at isolated points in the Brillouin zone. These Weyl points are topologically protected and can only disappear if they annihilate pairwise. The Weyl semimetal hosts non-trivial surface states, which take the form of open Fermi arcs, connecting the projections of two Weyl points to the Brillouin zone of the surface. Due to the robustness of this phase, Weyl semimetals are of interest for applications in quantum computers or electronic devices. In this work, we consider a model for the iridium electrons in pyrochlore iridates. For this material class, a Weyl-semimetal phase has been predicted. We calculate the phase diagram and find a rich variety of phases, the TWS, a strong topological insulator, a type-II Weyl semimetal and various kinds of magnetic order. For the TWS, we study the unconventional surface states for various geometries. For lower electron densities, we find a plethora of new magnetic configurations. We then turn our attention towards possible instabilities in Weyl semimetals. We study the stability of the Weyl semimetal phase against the formation of charge density waves. In the back-folded Brillouin zone, Weyl points that were originally far apart can be mapped close to each other and annihilate if that reduces the free energy. However we did not find a charge density wave. We therefore study the behavior of Weyl points under the influence of a charge density wave. We find mechanisms, that could possibly avoid the formation of such a charge configuration. For example, one-dimensional Fermi lines emerge.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	2
1.1 Motivation	2
1.2 Pyrochloriridate – Gitterstruktur und elektronische Eigenschaften	4
1.2.1 Pyrochloroxide	4
1.2.2 Effektives Kramersdublett für Pyrochloriridate	8
1.2.3 Alternative Modelle und Zugänge	11
1.2.4 Nächste Nachbarn und übernächste Nachbarn auf dem Pyrochlordgitter	12
1.3 Topologie und Festkörperphysik	14
1.3.1 Topologische Isolatoren	20
1.3.2 Weyl-Semimetalle	23
2 Modell und Methoden	32
2.1 Der Hamiltonoperator	32
2.1.1 Symmetrien und Hüpfprozesse	32
2.1.2 Der mikroskopische Hamiltonoperator	37
2.1.3 Der Hamiltonoperator im Impulsraum	40
2.2 Wechselwirkende Elektronen auf dem Pyrochlordgitter	42
2.3 Selbstkonsistenz und freie Energie	45
2.4 Bemerkungen zum Phasendiagramm	48
3 Resultate	49
3.1 Das Mean-Field-Phasendiagramm	49
3.1.1 Magnetische Ordnung im Phasendiagramm	51
3.1.2 Metall und Semimetal – Vergleich der Bandstrukturen . .	53
3.1.3 Magnetische Ordnung und Temperaturabhängigkeit . . .	53
3.1.4 Die rAI-Ordnung	54
3.1.5 Der topologische Isolator	59

3.2	Topologisches Weyl-Semimetall auf dem Pyrochlordgitter	64
3.2.1	Die Weyl-Punkte - Entstehung und Annihilation	66
3.2.2	Die mAI-Phase: Topologisch oder trivial?	67
3.3	Oberflächenzustände des Weyl-Semimetalls	72
3.3.1	Oberfläche senkrecht zur (011)-Richtung	73
3.3.2	Oberfläche senkrecht zur (001)-Richtung	82
3.3.3	Bemerkungen	83
3.4	Magnetische Ordnung und Dotierung	84
3.4.1	Phasendiagramm für $t_\sigma = -0.775$	84
3.4.2	Vergleich der Bandstrukturen	89
3.4.3	Phasendiagramm für $t_\sigma = -1$	91
3.5	Ladungsdichtewellen	92
3.5.1	Der Hamiltonoperator für Ladungsdichtewellen in (001)-Richtung	95
3.5.2	Der Hamiltonoperator für Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung	98
3.5.3	Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung	99
3.5.4	Ladungsdichtewellen in (001)-Richtung	103
4	Ausblick	111
A	Anhang	116
A.1	Details zu mikroskopischen Hüpfprozessen	116
A.2	Programmdetails und Methoden im Vergleich	119
A.3	Berechnung der Eigenwerte des Paritätsoperators	120
A.4	Der Hamiltonoperator des endlichen Festkörpers	121
A.5	Konstruktion des Hamiltonoperators für CDW	123
B	Literaturverzeichnis	126

1 Einleitung

1.1 Motivation

Im Mittelpunkt der vorliegenden Arbeit steht ein Modell zur Beschreibung der elektronischen Physik von Pyrochloriridaten. Dieser einleitende Abschnitt soll motivieren, warum die genauere Untersuchung solcher Modelle eine Vielzahl interessanter Ergebnisse erwarten lässt. Außerdem wird versucht, das betrachtete Modell in einen größeren Zusammenhang einzuordnen. Der Abschnitt orientiert sich an [1].

Wohl für kaum eine andere Materialklasse als den Pyrochloriridaten sind in der jüngeren Vergangenheit ähnlich viele interessante physikalische Phänomene vorgeschlagen worden. Grund dafür ist, dass Pyrochloriridate eine ideale Spielwiese zum Studium physikalischer Eigenschaften am Kreuzungspunkt von korrelierten Elektronen und starker Spin-Bahn-Wechselwirkung (SOC) bieten. Bereits jeder für sich genommen interessant, können bei ihrer Verschmelzung vielfältige neue Phänomene entstehen. Starke Elektronenkorrelationen sind zum Beispiel ursächlich für Magnetismus, Mott-Isolatoren oder unkonventionelle Supraleitung. Auf der anderen Seite erlebt die Untersuchung des Einflusses der Spin-Bahn-Wechselwirkung auf physikalische Eigenschaften spätestens seit der Entdeckung des Quanten-Spin-Hall-Effekts eine Blütezeit [2]. Ein generischer Hamiltonoperator für einen Festkörper, in dem beide Effekte berücksichtigt werden hat zum Beispiel die Form [1]

$$H = \sum_{ij,\alpha\beta} t_{ij,\alpha\beta} c_{i\alpha}^\dagger c_{j\beta} + \lambda \sum_i \mathbf{L}_i \cdot \mathbf{S}_i + U \sum_{i\alpha} n_{i\alpha} (n_{i\alpha} - 1), \quad (1.1)$$

mit den Gitterplätzen i und j , sowie den Orbitalen α und β und den zugehörigen Besetzungszahlen $n_{i\alpha}$. Der erste Term beschreibt Hüpfprozesse zwischen den Gitterplätzen und Orbitalen, also die kinetische Energie, der zweite und der dritte

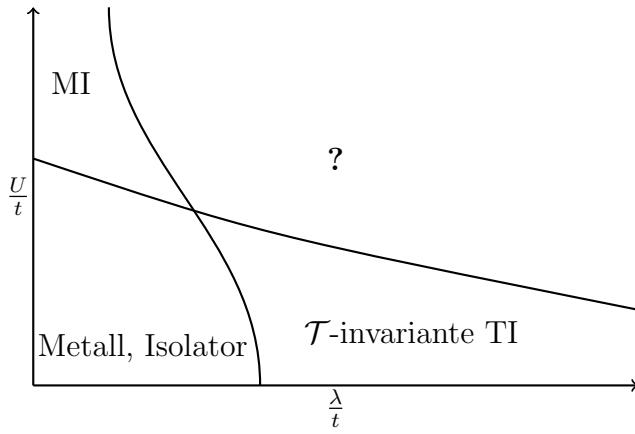


Abbildung 1.1: Schematisches Phasendiagramm für einen Hamiltonoperator mit Spin-Bahn-Kopplung λ und Wechselwirkungsstärke U . Als Energieeinheit dienen die Hüpfmatrixelemente. Nahe der Koordinatenachsen dominiert eine Wechselwirkung über die andere. Für $\lambda > U$ können zum Beispiel topologische Isolatoren (TI) realisiert werden, im umgekehrten Fall Mott-Isolatoren (MI). Besonders interessant ist der Bereich vergleichbarer Wechselwirkungen, der durch das Fragezeichen gekennzeichnet ist. Grafik nach [1].

Term entsprechen Spin-Bahn-Kopplung und Hubbard-Wechselwirkung, als einfachste Beschreibung von Elektronenkorrelationen. Abbildung 1.1 zeigt schematisch das Phasendiagramm solcher Hamiltonoperatoren (Details hängen natürlich von den Hüpfparametern $t_{ij\alpha\beta}$ ab). Die Linien, die die Bereiche starker und schwacher Spin-Bahn-Kopplung, bzw. Hubbard-Abstoßung trennen, teilen das Phasendiagramm in vier Regionen. Nahe der Koordinatenachsen dominieren Coulomb-Wechselwirkung, respektive Spin-Bahn-Kopplung und man findet zum Beispiel Mott-Isolatoren, wenn λ vernachlässigbar ist oder topologische Isolatoren, wenn die Effekte der Spin-Bahn-Wechselwirkung überwiegen. Die interessanteste Frage ist die nach dem Verhalten, wenn die konkurrierenden Wechselwirkungen von derselben Größenordnung sind. Für diesen Bereich, in dem weder U gegenüber λ vernachlässigbar ist, noch eine Beschreibung durch Modelle lokalisierter Elektronen angebracht wäre, ist eine Vielzahl exotischer Phasen vorgeschlagen worden, zum Beispiel topologische Mott-Isolatoren [3], Axion-Isolatoren und Weyl-Semimetalle [4], denen wir uns in dieser Arbeit detailliert widmen werden. Modelle für Pyrochloriridate bieten deshalb so viele interessante Eigenschaften, weil sie diesen interessantesten Bereich im Phasendiagramm abdecken. Das hat mehrere Gründe. Zum einen skaliert die Stärke der Spin-Bahn-Kopplung mit Z^4 . Quecksilber, Blei oder Tellur sind deshalb oft Bestandteile möglicher Realisierungen topologischer Isolatoren. Auch in Iridium mit $Z = 77$ ist die Spin-Bahn-Kopplung stark. Andererseits wird das physikalische Verhalten der Pyrochloriridate von

Elektronen aus der $5d$ -Reihe dominiert. Die zugehörigen Wellenfunktionen sind weniger stark lokalisiert als etwa bei den stark korrelierten $3d$ -Übergangsmetallen. Die hieraus resultierende Absenkung der Coulomb-Wechselwirkung führt dazu, dass der gewünschte Effekt vergleichbarer Größenordnungen in λ und U eintritt. Andere Materialklassen sind etwa Iridium-enthaltende Perovskite oder Osmiumoxide (für Osmium gilt $Z = 76$). Trotzdem sind die Pyrochloriridate besonders ausgezeichnet, da ihnen eine Pionierrolle bei der Erforschung neuer exotischer Phasen zufällt: So sind etwa Axion-Isolator und Weyl-Semimetall erstmals auf dem Pyrochlordgitter vorhergesagt worden [4].

In den folgenden einführenden Abschnitten werden zunächst die betrachtete Materialklasse und ihre relevanten Eigenschaften detailliert vorgestellt. Anschließend erfolgt eine kurze Einführung in verschiedene Aspekte der topologischen Festkörperphysik. In Kapitel 2 konkretisieren wir das untersuchte Modell und die genutzten Methoden. In Kapitel 3 werden die Resultate der numerischen Rechnungen präsentiert. Schließlich werden die Ergebnisse und mögliche sich hieraus ergebende Fragen in Kapitel 4 diskutiert.

1.2 Pyrochloriridate – Gitterstruktur und elektronische Eigenschaften

1.2.1 Pyrochloroxide

Bei starker Erhitzung leuchtet das Material $\text{NaCaNb}_2\text{O}_6\text{F}$ grün. Bekannter ist es deshalb auch unter dem Namen „Grünes Feuer“, im griechischen Pyrochlor. Es gibt einer ganzen Familie von Materialien gleicher Kristallstruktur seinen Namen, den Pyrochloroxiden. Die folgende Einführung zu der Struktur der Pyrochloroxide orientiert sich an [5].

Pyrochloroxide haben die allgemeine Strukturformel $A_2B_2\text{O}_7$, mit den Metallen A und B . Man unterscheidet zwischen $(3+, 4+)$ -Pyrochloroxiden mit der Strukturformel $A_2^{3+}B_2^{4+}\text{O}_7$ und $(2+, 5+)$ -Pyrochloroxiden mit entsprechend angepasster Strukturformel. Das den Pyrochloroxiden zu Grunde liegende Bravais-Gitter ist kubisch flächenzentriert (fcc). Die Gitterkonstante a liegt zwischen 1 nm und 1.04 nm. Tabelle 1.1 listet die zu einer primitiven Einheitszelle des kubisch-flächenzentrierten Gitters gehörenden Atomkoordinaten auf. Auffällig sind hier zwei Punkte: Die Sauerstoffatome wurden in zwei kristallographisch unterschiedliche Gruppen O und O' aufgeteilt. Man schreibt die Strukturformel deshalb genauer als $A_2B_2\text{O}_6\text{O}'$. Des weiteren hängen die exakten Positionen der O -Atome von einem freien Parameter x ab, dem Sauerstoffparameter. Dieser bestimmt die von den Sauerstoffatomen gebildete Umgebung der A - und B -Atome. Allge-

Atom	Positionen
A	$(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}), (\frac{1}{2}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4}), (\frac{1}{4}, \frac{1}{2}, \frac{1}{4}), (\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{2})$
B	$(0, 0, 0), (0, \frac{1}{4}, \frac{1}{4}), (\frac{1}{4}, 0, \frac{1}{4}), (\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, 0)$
O	$(x, \frac{1}{8}, \frac{1}{8}), (-x, \frac{7}{8}, \frac{7}{8}), (\frac{1}{4} - x, \frac{1}{8}, \frac{1}{8}), (\frac{3}{4} + x, \frac{7}{8}, \frac{7}{8}), (\frac{1}{8}, x, \frac{1}{8}), (\frac{7}{8}, -x, \frac{7}{8})$ $(\frac{1}{8}, \frac{1}{4} - x, \frac{1}{8}), (\frac{7}{8}, \frac{3}{4} + x, \frac{7}{8}), (\frac{1}{8}, \frac{1}{8}, x), (\frac{7}{8}, \frac{7}{8}, -x), (\frac{1}{8}, \frac{1}{8}, \frac{1}{4} - x), (\frac{7}{8}, \frac{7}{8}, \frac{3}{4} + x)$
O'	$(\frac{3}{8}, \frac{3}{8}, \frac{3}{8}), (\frac{5}{8}, \frac{5}{8}, \frac{5}{8})$

Tabelle 1.1: Positionen aller Atomarten in einer primitiven Einheitszelle [5].

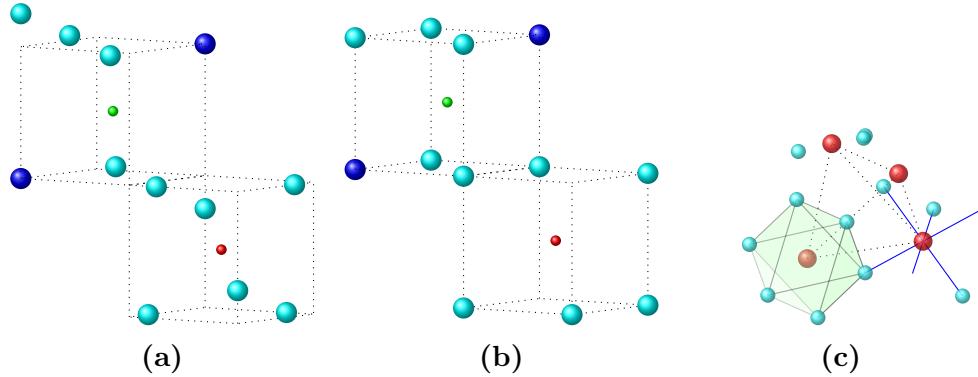


Abbildung 1.2: Lokale Umgebung für B -Atome (rot) und A -Atome (grün). In (a) und (c) ist $x = 0.3125$. Die hellblauen Sauerstoffatome bilden regelmäßige Oktaeder um die B -Atome. In (b) ist $x = 0.375$. Sechs hellblaue (O) und zwei dunkelblaue (O') Sauerstoffatome bilden einen Würfel um die A -Atome. Man beachte in (c), dass je zwei B -Atome einen gemeinsamen Liganden haben.

mein sind die A -Atome von verzerrten Würfeln und die B -Atome von in (111)-Richtung gestauchten oder gestreckten Oktaedern umgeben. Zwei Werte von x sind ausgezeichnet. Für $x = 0.375$ umgibt ein regelmäßiger Würfel aus zwei O' - und sechs O -Atomen jedes A -Atom, dies ist in Abbildung 1.2(b) zu sehen. Für $x_{\text{ideal}} = 5/16 = 0.3125$ ist jedes B -Atom Mittelpunkt eines regelmäßigen Oktaeders (Abbildung 1.2(a) und 1.2(c)). Der Wert von x hängt von der Besetzung der Atome A und B ab und liegt zwischen $x = 0.309$ und $x = 0.355$. Für Pyrochloriridate, also $B = \text{Ir}$ gilt $x > 0.3125$ [1]. Die umgebenden Oktaeder sind also gestaucht. Allerdings kann die Abweichung klein sein, für $A = \text{Pr}$ beträgt sie zum Beispiel 5%. In dieser Arbeit wird von einer perfekt oktaedrischen Umgebung der B -Atome ausgegangen. In Abbildung 1.2(c) ist des Weiteren zu erkennen, dass jedes Sauerstoffatom O zur Umgebung von zwei verschiedenen B -Atomen gehört. Bei der Motivation eines mikroskopischen Hamiltonoperators ist dieser Umstand wichtig. Abbildung 1.3(a) zeigt alle Atome, die zu den vier

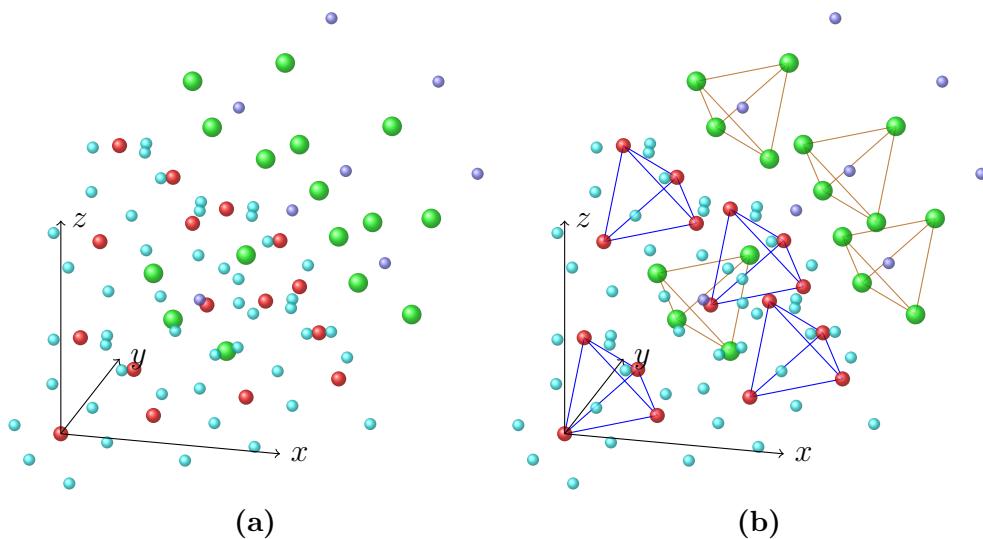


Abbildung 1.3: Ausschnitt aus der Pyrochloroxidstruktur. Es sind die zu vier verschiedenen Bravais-Gitterpunkten gehörenden Atome gezeigt. Die Farbcodierung ist wie in Abbildung 1.2 gewählt. Was in (a) noch unstrukturiert wirkt, erscheint in (b) systematischer, wenn regelmäßige Teraeder als kleinste Einheiten hoher Symmetrie identifiziert werden.

Gitterplätze der konventionellen Einheitszelle des fcc-Gitters gehören. Diese offenbar komplizierte Struktur kann auf verschiedenste Arten beschrieben werden, zum Beispiel als ineinander verwobene Netzwerke aus BO_6 -Oktaedern und A_2O^- -Ketten oder als Fluoridstruktur mit einer vakanten Stelle. Eine sinnvolle Wahl der Beschreibung hängt vom Sauerstoffparameter ab. Es ist Ausdruck der Komplexität der Struktur, dass eine Beschreibung allein nicht alle Charakteristika abdeckt. Die hier sinnvollste Beschreibung datiert aus dem Jahr 1970 und geht auf Pannetier und Lucas zurück [6]. Abbildung 1.3(b) zeigt die Idee dahinter: Die kleinsten elementaren Einheiten hoher Symmetrie, sowohl für die A- als auch für die B-Atome, sind regelmäßige Tetraeder. Die Pyrochlorstruktur kann als verschachteltes Netzwerk aus Tetraedern aus A- und B-Atomen mit unterschiedlichen Sauerstoffumgebungen interpretiert werden. In der Mitte jedes Tetraeders aus A-Atomen sitzt ein Sauerstoffatom, während alle B-Atome von (verzerrten) Oktaedern umgeben sind. Die beiden Tetradergitter sind um $a/2$ in eine der zur (100)-Richtung äquivalenten Richtungen verschoben. Die Anordnung von A- und B-Atomen auf den Ecken von Tetraedern wird als Pyrochlordgitter bezeichnet. Abbildung 1.4(a) zeigt einen Ausschnitt dieses Gitters. Jeder Eckpunkt gehört zu zwei verschiedenen Tetraedern, in der Abbildung je ein gelbes und ein violettes, daher auch die englische Bezeichnung als Netzwerk von *corner shared tetrahedra*. Erwähnt sei noch eine alternative Sichtweise auf das Pyrochlordgitter. In (111)-Richtung ergibt sich dieses auch durch abwechselndes Schichten von Dreiecks-

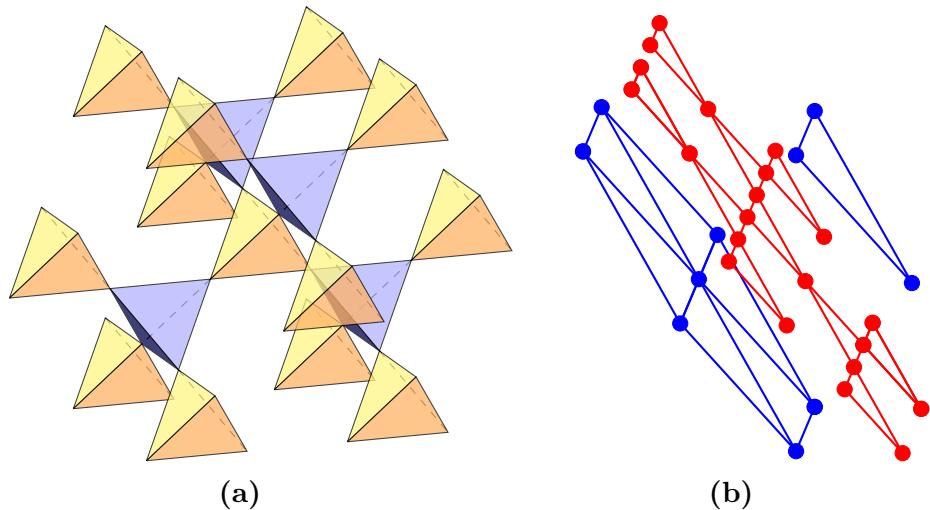


Abbildung 1.4: Zwei unterschiedliche Darstellungen des Pyrochlordgitters:
 (a) zeigt die Interpretation dieses Gitters als Netzwerk von zwei unterschiedlichen Tetraedern mit gemeinsamen Eckpunkten, (b) zeigt geschichtete Dreiecks- und Kagomé-Gitter

und Kagomé-Gittern (Abbildung 1.4(b)) [7]. Bestimmte magnetische Ordnungen erscheinen unter dieser Betrachtungsweise natürlicher.

Wir wenden uns jetzt den Pyrochloriridaten mit der Strukturformel $R_2^{3+}Ir_2^{4+}O_7$ zu. R gehört zu den Metallen der seltenen Erden. Der später diskutierte Hamiltonoperator beschreibt Hüpfprozesse auf dem Iridiumgitter und vernachlässigt die Wechselwirkungen mit den Elektronen der R -Atome. Warum ist dies möglich? Die bei niedrigen Energien relevanten Elektronen der R -Atome entstammen der f -Schale. Bei magnetischer Ordnung auf dem Iridiumgitter spüren die R -Momente ein Austauschfeld. Diese Wechselwirkung und damit auch der Einfluss der R -Elektronen auf die Dynamik der Iridiumatome ist aber gering, da die Wellenfunktionen der f -Elektronen stark lokalisiert sind [1]. Disseler *et al.* liefern den experimentellen Unterbau zu dieser Hypothese. Man findet universelles Verhalten für verschiedene Substituenten für R , sowohl mit als auch ohne magnetischem Gesamtmoment. Entsprechend kann geschlussfolgert werden, dass Eigenschaften der Iridiumatome das Verhalten bei niedrigen Temperaturen dominieren. Ausnahmen gibt es aber, zum Beispiel beeinflusst das magnetische Moment von Praseodym die Niedrig-Energie-Eigenschaften von $Pr_2Ir_2O_7$ stark.

Die meisten theoretischen Untersuchungen zu Pyrochloriridaten konzentrieren sich entweder auf die Iridumelektronen, oder behandeln, sofern R magnetisch ordnet, lokalisierte magnetische Momente der R -Atome auf dem Pyrochlordgitter. Offenbar bietet sich dann ein idealer Rahmen zum Studium eines frustrierten Gitters, da es für Spins auf den Eckpunkten eines Tetraeders nicht möglich ist, ihre Gesamtenergie durch Minimierung der Wechselwirkungsenergie zwischen allen

Konstituenten zu minimieren. Theoretische und experimentelle Ergebnisse für magnetische Pyrochloroxide zeigen die erwartete Vielfalt, darunter Spin-Gläser, Spin-Flüssigkeiten und Spin-Eis. Ein Überblick gibt [7].

Die Kernaussage dieses Abschnitts lautet, dass die Fokussierung auf die ein Pyrochlordgitter besetzenden Iridiumatome bereits eine realistische Beschreibung von Pyrochloriridaten liefern kann. Der nächste Abschnitt untersucht die Elektronenkonfiguration des Iridiums genauer.

1.2.2 Effektives Kramersdublett für Pyrochloriridate

Iridium hat die Elektronenkonfiguration $[Xe] 4f^{14}5d^76s^2$. In Pyrochloriridaten liegen die Iridiumatome jedoch im Zustand Ir^{4+} vor und die Konfiguration $[Xe] 4f^{14}5d^5$ muss betrachtet werden. Fünf 5d-Elektronen bestimmen die Physik bei niedrigen Energien. Für diese wird eine adäquate Beschreibung gesucht. Ausgangspunkt der Betrachtung ist das durch die Sauerstoffumgebung generierte Kristallfeld. Für $x = x_{\text{ideal}}$ reduziert sich die Symmetrie der Iridiumatome von $SO(3)$ auf die Untergruppe O_h . Die irreduziblen Darstellungen von O_h liefern die Entartungsgrade. Die Dekomposition der irreduziblen Darstellung von $SO(3)$ in irreduzible Darstellungen von O_h ,

$$\mathcal{D}^{(2)} = \bigoplus_{\nu} a_{\nu} \mathcal{D}^{(\nu)}, \quad (1.2)$$

ergibt sich durch Ausnutzen der Orthogonalität der Charaktertafel. Hier sind $\mathcal{D}^{(2)}$ die von den d -Orbitalen ($l = 2$) aufgespannte irreduzible Darstellung von $SO(3)$ und $\mathcal{D}^{(\nu)}$ die irreduziblen Darstellungen von O_h . Die bezüglich der irreduziblen Dartellungen von O_h reduzible Darstellung von $SO(3)$ enthält die Darstellungen t_{2g} und e_g [8]. e_g ist zwei-, t_{2g} dreidimensional. Die d -Orbitale spalten im Kristallfeld in ein energetisch höher liegendes Dublett (e) und ein niedriger liegendes Triplet (t_{2g}) auf. Die Aufspaltung wird bei Betrachtung der Wellenfunktion anschaulich klar. Man erhält

$$d_{x^2-y^2} = \frac{1}{\sqrt{2}}(d_2 + d_{-2}) = \frac{\sqrt{3}}{2}(x^2 - y^2), \quad (1.3)$$

$$d_{z^2} = d_0 = \frac{1}{2}(3z^2 - r^2) \quad (1.4)$$

als Basis des Unterraums, der sich wie e_g transformiert, und

$$d_{xy} = \frac{1}{i\sqrt{2}}(d_2 - d_{-2}), \quad (1.5)$$

$$d_{xz} = \frac{-1}{\sqrt{2}}(d_1 - d_{-1}), \quad (1.6)$$

$$d_{yz} = \frac{i}{\sqrt{2}}(d_1 + d_{-1}) \quad (1.7)$$

als diejenigen Linearkombinationen, die sich unter Elementen aus O_h wie t_{2g} transformieren. An jedem Tetraedergitterpunkt sind diese Wellenfunktionen in der lokalen Basis formuliert, die durch die umgebenden Liganden definiert wird. Die Sauerstoffatome befinden sich in Richtung der lokalen Koordinatenachsen. Elektronen in den Orbitalen $d_{x^2-y^2}$ und d_{z^2} haben eine höhere Aufenthaltswahrscheinlichkeit in Richtung der Sauerstoffatome, während die t_{2g} -Elektronen die Zwischenräume besetzen. Deshalb liegen sie energetisch niedriger und es kommt zur Niveaupaltung. Multipolentwicklung des Kristallfeldes nach Kugelflächenfunktionen unter Ausnutzung der Symmetrien und Störungstheorie erster Ordnung [9] liefert die neuen Energieniveaus. Diese können nach Definition des Feldstärkeparameters Dq abweichend vom ungestörten Eigenwert als

$$E = E_0 + 6Dq \text{ für die } e_g\text{-Elektronen} \quad (1.8)$$

$$E = E_0 - 4Dq \text{ für die } t_{2g}\text{-Elektronen.} \quad (1.9)$$

geschrieben werden. Für Pyrochloriridate beträgt dieser Energieunterschied etwa 2 eV [1]. Die Verteilung der 5 d -Elektronen auf die beiden Niveaus lässt das obere unbesetzt. Das e_g -Dublett spielt bei niedrigen Energien keine Rolle und wird vernachlässigt.

Im nächsten Schritt berücksichtigen wird die Spin-Bahn-Kopplung für die Elektronen der t_{2g} -Mannigfaltigkeit. Dabei wird eine nützliche Analogie zwischen den t_{2g} und p -Elektronen ausgenutzt [8], [10]. Da zuerst die Aufspaltung der d -Orbitale im Kristallfeld untersucht wurde und der Effekt der Spin-Bahn-Kopplung auf die resultierenden neuen Zuständen anschließend betrachtet wird, nehmen wir an, dass die Aufspaltung im Kristallfeld die dominierende Energieskala definiert. Untersucht wird die Wirkung des Drehimpulsoperators auf Elektronen in den Orbitalen p_1 , p_0 und p_{-1} mit den entsprechenden Quantenzahlen m_l . Exemplarisch wird hier L_z betrachtet, vollständig analoges Vorgehen ist für die anderen Komponenten möglich. Die Wirkung von L_z ist in Matrixdarstellung durch

$$L_z \begin{pmatrix} p_1 \\ p_0 \\ p_{-1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} p_1 \\ p_0 \\ p_{-1} \end{pmatrix} \quad (1.10)$$

gegeben. Betrachten wird die durch

$$\varphi_1 = d_{-1}, \quad \varphi_0 = \frac{1}{\sqrt{2}}(d_2 - d_{-2}), \quad \varphi_{-1} = -d_1 \quad (1.11)$$

$$e_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}(d_2 + d_{-2}), \quad e_2 = d_0 \quad (1.12)$$

definierte Basis der d -Elektronen, aufgeteilt nach t_{2g} - und e_g -Elektronen. Der Drehimpulsoperator wirkt auf diese Wellenfunktionen wie

$$L_z \begin{pmatrix} t_{2g} \\ e_g \end{pmatrix} = L_z \begin{pmatrix} \varphi_1 \\ \varphi_0 \\ \varphi_{-1} \\ e_1 \\ e_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -2 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -2 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varphi_1 \\ \varphi_0 \\ \varphi_{-1} \\ e_1 \\ e_2 \end{pmatrix}. \quad (1.13)$$

Die e_g -Mannigfaltigkeit soll vernachlässigt und deshalb auf den Unterraum der φ -Orbitale projiziert werden. Dann wird die Wirkung des Drehimpulsoperators auf die t_{2g} -Elektronen durch

$$L_z \begin{pmatrix} \varphi_1 \\ \varphi_0 \\ \varphi_{-1} \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} p_1 \\ p_0 \\ p_{-1} \end{pmatrix}. \quad (1.14)$$

beschrieben. Der Drehimpulsoperator in z -Richtung wirkt auf die t_{2g} -Elektronen, wie er auf p -Elektronen wirken würde. Einziger Unterschied ist das Vorzeichen. Für L_x und L_y ergibt sich das gleiche Resultat. Kompakt schreiben wir dies als

$$\mathcal{P}_{t_{2g}} \mathbf{L} \mathcal{P}_{t_{2g}} = -\mathbf{L}_{\text{eff}}. \quad (1.15)$$

Hier wurde der Projektor auf den t_{2g} -Unterraum $\mathcal{P}_{t_{2g}}$ definiert. Man kann die t_{2g} -Elektronen also wie Pseudo- p -Elektronen behandeln. In Analogie zur Atomphysik wird der Pseudo-Gesamtdrehimpulsoperator $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ betrachtet, um die richtigen Eigenzustände bei Berücksichtigung der Spin-Bahn-Kopplung zu finden. Wegen $l = -1$ sind die Energien im Vergleich zum bekannten Resultat invertiert, die Multipletts sind aber die gleichen. Das $J_{\text{eff}} = 3/2$ -Quadruplett hat die Energie $-\lambda/2$ und liegt energetisch niedriger als das Dublett bei der Energie λ [3]. Für Iridiumatome gilt $\lambda \approx 500\text{meV}$ [11]. Verteilt man die 5 d -Elektronen auf beide Multipletts, wird das energetisch höhere Dublett halb gefüllt und durch eine Energielücke von dem Quadruplett getrennt, die so groß ist, dass eine realistische Beschreibung der Physik bei niedrigen Energien unter Berücksichtigung des Dubletts alleine möglich erscheint. Die zugehörigen Wellenfunktionen sind:

$$|J_{\text{eff}}^z = +\frac{1}{2}\rangle = |\uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(|xy, \uparrow\rangle + |yz, \downarrow\rangle + i|xz, \downarrow\rangle), \quad (1.16)$$

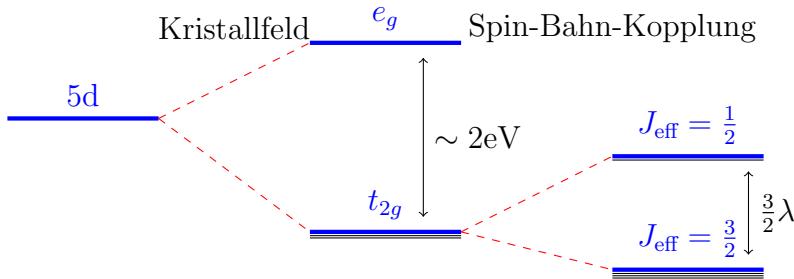


Abbildung 1.5: Aufspaltung der d -Orbitale im Kristallfeld und durch Spin-Bahn-Kopplung.

$$|J_{\text{eff}}^z = -\frac{1}{2} = \uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} (-|xy, \downarrow\rangle + |yz, \uparrow\rangle + i|xz, \uparrow\rangle). \quad (1.17)$$

Der Zeitumkehroperator \mathcal{T} überführt diese beiden Zustände ineinander, deshalb bezeichnet man sie als Kramers-Partner. Für die beiden Einstellmöglichkeiten der z -Komponente des Gesamtdrehimpulsoperators werden die Begriffe \uparrow - und \downarrow -Spin benutzt. Abbildung 1.5 fasst den Inhalt dieses Kapitels zusammen. In Abschnitt 2.1.1 identifizieren wir den allgemeisten Tight-Binding-Hamiltonoperator für ein Kramers-Dublett auf dem Pyrochlordgitter.

1.2.3 Alternative Modelle und Zugänge

Wir diskutieren noch, welche Modelle *nicht* betrachtet werden. In einer ersten Annahme wird die Rolle der physikalisch relevanten Komponente in Pyrochloriridaten den Iridiumatomen zugeschrieben. Mögliche Folgen von Wechselwirkungen zwischen den lokalen Momenten der R -Elektronen und den Iridumelektronen werden in [12] diskutiert. Die Konsequenzen des f - d -Austausches sind vielfältig, man findet etwa eine Weyl-Semimetall-Phase, selbst bei Vernachlässigung der Hubbard-Wechselwirkung zwischen den d -Elektronen. Die Annahme oktaedrischer Symmetrie hat zum $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Bild geführt. Experimentell findet man stets gestauchte Oktaeder. Diese trigonalen Störungen reduzieren die Symmetrie auf D_{3d} . Die Zerlegung der irreduziblen Darstellung von t_{2g} nach irreduziblen Darstellungen der neuen Gruppe liefert eine weitere Niveaupartition in ein Singulett (a_{1g}) und ein Dublett (e'_g). Ein alternativer Ausgangspunkt wäre also ein Hamiltonoperator, der alle diese Orbitale und die Spin-Bahn-Kopplung berücksichtigt. Solche Modelle werden in [13] und in [14] diskutiert. Die Abweichung des Sauerstoffparameters von x_{ideal} kann aber klein sein. Interpretieren wir die Symmetriereduktion als kleine Störung, können wir zunächst die Spin-Bahn-Kopplung berücksichtigen. Nachträglich behandelt man den Einfluss der Symmetriebrechung auf die $J_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ -Mannigfaltigkeit störungstheoretisch. Dies führt dann höchstens zu einer Renormierung der Parameter im Tight-Binding-

Hamiltonoperator und kann den Charakter der Niveaus durch Mischen mit den energetisch tiefer liegenden Zuständen verändern. Zeitumkehrsymmetrie garantiert aber die Existenz eines energetisch höher liegenden Kramers-Dubletts [1], [11]. Nicht zuletzt geben Experimente Hinweise darauf, dass die Spin-Bahn-Kopplung zu neuen $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Zuständen in Iridiumatomen führt [15], [16]. Die untersuchten Materialien sind allerdings keine Pyrochloriridate, sondern haben Perovskit-Struktur. Da auch dort die Valenz-Elektronen aus der t_{2g} - und e_g -Mannigfaltigkeit stammen, sind die Resultate auch für Pyrochloriridate relevant.

1.2.4 Nächste Nachbarn und übernächste Nachbarn auf dem Pyrochlordgitter

Zur Bestimmung des allgemeinsten Tight-Binding-Hamiltonoperators auf dem Pyrochlordgitter identifizieren wir die nächsten und übernächsten Nachbarn. Die Basisvektoren des Pyrochlordgitters seien im folgenden

$$\mathbf{b}_0 = (0, 0, 0), \quad \mathbf{b}_1 = (0, 1, 1), \quad \mathbf{b}_2 = (1, 0, 1), \quad \mathbf{b}_3 = (1, 1, 0). \quad (1.18)$$

Der Vektor \mathbf{b}_i zeigt zum Eckpunkt i eines Tetraeders. Damit sind die Basisvektoren des fcc-Gitters

$$\mathbf{a}_i = 2\mathbf{b}_i, \quad (1.19)$$

für $i > 1$. Das entspricht einer Gitterkonstanten $a = 4$. Zunächst werden die nächsten Nachbarn betrachtet. Jedes Atom hat sechs nächste Nachbarn. Diese liegen am Ende der sechs Tetraederkanten, die an dem Ort des betrachteten Atoms zusammenlaufen. Abbildung 1.6 zeigt dies. Der Abstand zwischen nächsten Nachbarn beträgt mit den oben gewählten Vektoren $\sqrt{2}$. Von den sechs nächsten Nachbarn besetzen je zwei äquivalente Tetraederecken an unterschiedlichen Bravais-Gitterpunkten. Zu jedem Atom gehören drei nächste Nachbarn, die zum selben Bravais-Gitterpunkt – oder äquivalent zum selben Tetraeder – gehören. Die verbleibenden drei nächsten Nachbarn liegen auf drei verschiedenen Tetraedern. Von jedem Iridiumatom kann also auf vier verschiedene Tetraeder gehüpft werden. Zum Beispiel hat das Iridumatom $2'$ aus Abbildung (1.6) die Position $\mathbf{b}_{2'} = -\mathbf{b}_2 = -\mathbf{a}_2 + \mathbf{b}_2$, gehört also zu dem Bravais-Gitterpunkt, der in negativer \mathbf{a}_2 -Richtung liegt. Hüpfprozesse, bei denen sich das Tetraeder nicht ändert, heißen im folgenden direkte Hüpfprozesse; als indirekt bezeichnen wir solche mit Tetraederwechsel. Ein systematischer Überblick über die Änderung der Bravais-Gitterpunkte bei den indirekten Hüpfprozessen wird sich als hilfreich erweisen. Gehüpft werde von j nach i über indirekte Hüpfprozesse. Das Tetraeder,

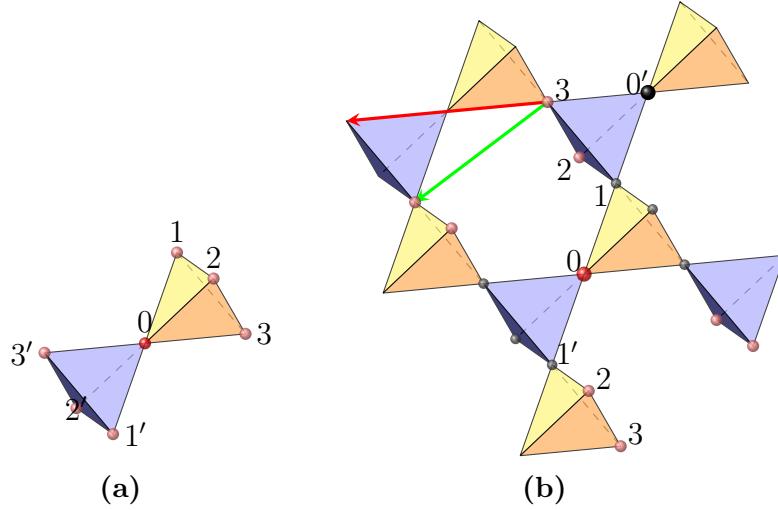


Abbildung 1.6: Nächste Nachbarn (a) und übernächste Nachbarn (b) auf dem Pyrochloorgitter. Die hellroten übernächsten Nachbarn von 0 teilen sich mit 0 einen schwarzen nächsten Nachbarn. Sie sind durch Vektoren ähnlich zum grünen Vektor verbunden. Der rote Vektor verbindet gleiche Tetraederecken und ist kein NNN-Vektor.

dessen Eckpunkt j ist, gehöre zum Bravais-Gitterpunkt

$$\mathbf{R}_j = k\mathbf{a}_1 + l\mathbf{a}_2 + m\mathbf{a}_3. \quad (1.20)$$

Dann ändert sich der Bravais-Gitterpunkt, zu dem das Zielatom i gehört, gemäß

$$\mathbf{R}_i = (k + \delta_{1i} - \delta_{1i})\mathbf{a}_1 + (l + \delta_{2i} - \delta_{2i})\mathbf{a}_2 + (m + \delta_{3i} - \delta_{3i})\mathbf{a}_3. \quad (1.21)$$

Für die übernächsten Nachbarn ist die Situation etwas komplizierter: Jedes Atom hat zwölf übernächste Nachbarn, die auf neun verschiedenen Tetraedern liegen. Abbildung 1.6(b) gibt einen Überblick. Systematisch lassen sich übernächste Nachbarn über gemeinsame nächste Nachbarn klassifizieren. Betrachtet werde das Ausgangsatom 0 und sein nächster Nachbar 1 (der Einfachheit halber auf demselben Tetraeder, so wie in Abbildung 1.6(b)). Welche der fünf weiteren nächsten Nachbarn von 1 sind die übernächsten Nachbarn von 0? Zwei der nächsten Nachbarn komplettieren das Tetraeder auf dem 0 und 1 liegen und sind ebenfalls nächste Nachbarn von 0. Weiterhin hat Atom 1 einen nächsten Nachbarn 0'. Der Vektor, der 0 und 0', verbindet hat die doppelte Tetraederkantenlänge $2\sqrt{2}$, so wie in Abbildung 1.6(b) der rote Vektor. 0 und 0' sind keine übernächsten Nachbarn. Die verbleibenden zwei nächsten Nachbarn von 1 sind die übernächsten Nachbarn von 0. Vektoren ähnlich zum grünen Vektor mit Länge $\sqrt{6}$ in Abbildung 1.6(b) verbinden sie. Die übernächsten Nachbarn von 0, die sich mit 0 den

nächsten Nachbarn 1 teilen, haben die Positionen 2 und 3. Allgemein sind also Hüpfprozesse

$$j \xrightarrow{j \neq c} c \xrightarrow{i \neq c, j} i \quad (1.22)$$

für Hüpfen von j nach i mit gemeinsamen nächsten Nachbarn c erlaubt. Mit Gleichung (1.21) können auch NNN-Hüpfprozesse systematisch beschrieben werden. Unterschieden werden die beiden Fälle, dass i und c oder j und c zum selben Bravais-Gitterpunkt gehören. Sind j und c Eckpunkte desselben Tetraeders, dann ändert sich der Bravais-Gitterpunkt so, wie er sich beim Hüpfen zwischen nächsten Nachbarn von c nach i ändert. In Gleichung (1.21) wird j durch c ersetzt. Entsprechendes gilt, wenn c und i direkte nächste Nachbarn sind. Insgesamt erhält man

$$\mathbf{R}_i = (k + \delta_{1j} - \delta_{1c})\mathbf{a}_1 + (l + \delta_{2j} - \delta_{2c})\mathbf{a}_2 + (m + \delta_{3j} - \delta_{3c})\mathbf{a}_3 \quad (1.23)$$

für die Änderung des Bravais-Gitterpunktes, wenn c und i auf dem selben Tetraeder liegen und

$$\mathbf{R}_i = (k + \delta_{1c} - \delta_{1i})\mathbf{a}_1 + (l + \delta_{2c} - \delta_{2i})\mathbf{a}_2 + (m + \delta_{3c} - \delta_{3i})\mathbf{a}_3 \quad (1.24)$$

wenn dies für c und j gilt. Hüpfprozesse, bei denen Ausgangsort und gemeinsamer nächster Nachbar auf demselben Tetraeder liegen, heißen direkte Prozesse, die anderen Prozesse entsprechend indirekt. In Abbildung 1.6(b) kann zum Beispiel von 0 über 1 direkt zu 2 und 3 gesprungen werden oder indirekt über 1' zu 2 und 3 auf einem anderen Tetraeder. Permutation von 1, 2 und 3 führt insgesamt auf zwölf übernächste Nachbarn.

1.3 Topologie und Festkörperphysik

Eines der reichhaltigsten Gebiete der Festkörperphysik beschäftigt sich mit der Charakterisierung und Untersuchung verschiedener Phasen, wie etwa Supraleitern, Bose-Einstein-Kondensaten, Ferro- oder Antiferromagneten. Als überaus erfolgreich erwiesen, hat sich die Klassifizierung dieser Phasen durch die Symmetrien, die sie brechen, etwa die Rotationssymmetrie im Spinraum im Falle des Ferromagneten oder die Eichsymmetrie bei Supraleitern. Die phänomenologische Landau-Theorie beschreibt solche Phasen und Übergänge zwischen ihnen mit Hilfe lokaler Ordnungsparameter, zum Beispiel der Magnetisierung beim Ferromagneten. In der ungeordneten Phase verschwindet der Ordnungsparameter, er erhält jedoch einen endlichen Erwartungswert, wenn Symmetrien gebrochen werden. Der Glaube an die universelle Verwendbarkeit dieser Theorie ist mit der Entdeckung

des Quanten-Hall-Zustandes 1980 verschwunden [17]. In starken Magnetfeldern ist die Hall-Leitfähigkeit σ_{xy} eines zweidimensionalen Elektronengases in Einheiten von e^2/h quantisiert. Dieser Zustand entzieht sich der Klassifizierung nach oben beschriebenem Schema. Seine Entdeckung läutete das Zeitalter der topologischen Festkörperphysik ein, die sich mit der Charakterisierung von Phasen beschäftigt, deren Beschreibung nicht durch einen lokalen Ordnungsparameter möglich ist. Das folgende Kapitel soll einen kurzen Einblick in das Zusammenspiel von Topologie und Festkörperphysik geben. Die Auswahl, die bei einem derart weitem Feld zwingend getroffen werden muss, ist dabei im Hinblick auf das Verständnis aller im später betrachteten Modell auftauchenden topologischen Phasen erfolgt. Der Fokus liegt auf zweidimensionalen Chern-Isolatoren, ohne die Weyl-Semimetalle nicht verstanden werden können, sowie auf \mathbb{Z}_2 -Isolatoren in drei Dimensionen. Die topologische Klassifikation dieser Systeme lässt sich in einen größeren Zusammenhang einbetten. Darauf wird hier verzichtet und auf die Referenzen [18] und [19] verwiesen. Der Abschnitt orientiert sich an [20] und [21], die mathematischen Details sind [22] entnommen.

Beim Quanten-Hall-Effekt (QHE) besetzen die Elektronen Landau-Niveaus. Nach geeigneter Wahl einer Einheitszelle können diese als Bandstruktur eines Isolators interpretieren werden. Deshalb werden jetzt allgemein Systeme betrachtet, bei denen das chemische Potential innerhalb der Bandlücke liegt, die das besetzte Valenzband vom unbesetzten Leitungsband trennt. Sicherlich unterscheiden sich verschiedene Isolatoren (oder Halbleiter) in vielen Details ihrer Bandstruktur. Wir wollen der Frage nachgehen, ob es ein – noch genauer zu definierendes – größeres Klassifikationsschema gibt, das unterschiedliche Bandstrukturen mit Energielücke oder die zugehörigen Hamiltonoperatoren in gewisse Klassen einteilt, ohne dass alle Details der Bänder berücksichtigt werden.

Der mathematische Teilbereich der Topologie beschäftigt sich mit einer solchen Einteilung von topologischen Räumen nach grundlegenden Eigenschaften, also der Zusammenfassung von „topologisch äquivalenten“ Räumen. Topologische Räume werden durch ein sehr schwaches Axiomensystem definiert, so dass viele mathematische Strukturen darin enthalten sind. Zunächst muss eine Vorstellung davon gewonnen werden, was topologisch äquivalent heißen soll. So ist zum Beispiel der Begriff der Kongruenz aus der elementaren Geometrie eine zu starke Bedingung. Topologisch sollen zwei Objekte äquivalent sein, wenn diese sich durch bijektive, stetig invertierbare Abbildungen ineinander überführen lassen. Solche Abbildungen heißen Homöomorphismen und falls ein solcher existiert, sind die Räume homöomorph zueinander. Die Eigenschaft, homöomorph zueinander zu sein, definiert eine Äquivalenzrelation und damit eine Einteilung topologischer Räume in Äquivalenzklassen. (Tatsächlich werden bei dem Versuch, Hamiltonoperatoren

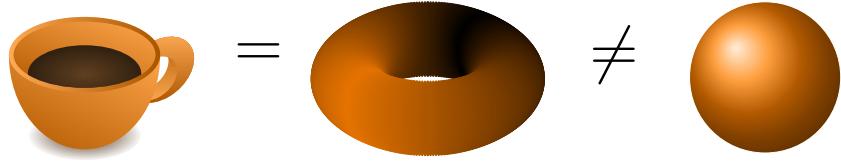


Abbildung 1.7: Eine Kaffeetasse (ob gefüllt oder nicht) ist topologisch äquivalent zu einem Donut, beide unterscheiden sich aber topologisch von einer Orange.

zu klassifizieren gar keine Homöomorphismen gebraucht, es reicht der schwächere Begriff der Homotopie.) Wir übertragen das auf unseren Fall: Eine Bandstruktur mit Energielücke geht bei stetigen Änderungen des Hamiltonoperators in eine andere Bandstruktur mit Energielücke über. Die zugehörigen Hamiltonoperatoren heißen topologisch äquivalent, wenn die Verformung möglich war, ohne dass dabei die Energielücke geschlossen wurde. Die letzte Forderung ist essentiell um zu garantieren, dass das System stets im Grundzustand bleibt. Ein klassisches geometrischen Analogon ist die stetige Verformung, die einen Donut in eine Kaffeetasse überführt (Abbildung 1.7). Detailliert betrachtet ist eine Kaffeetasse kein Donut, aber wenn wir ein etwas größeres Klassifikationsschema akzeptieren, dann sind sie doch äquivalent.

Ausgestattet mit dem Begriff der topologischer Äquivalenz von Hamiltonoperatoren, stellen sich zwei Anschlussfragen: Gibt es mehr als eine Äquivalenzklasse, sind also nicht alle Isolatoren topologisch äquivalent zum Vakuum, das im Dirac'schen Sinne ebenfalls ein Isolator ist? Falls es mehrere Äquivalenzklassen gibt, können dann alle Objekte einer Klasse durch bestimmte Größen definiert werden? Die Antwort auf die erste Frage lautet ja, Quanten-Hall-Zustand und Vakuum sind topologisch nicht äquivalent, genauso wenig wie Donut und Orange. Die zweite Frage umgehen wir, indem wir topologische Invarianten als diejenigen Größen definieren, die unter Homöomorphismen invariant sind. Das Problem verlagert sich damit auf die Suche nach solchen Größen. Das können die unterschiedlichsten mathematischen Entitäten sein, z.B. unterscheidet die Eigenschaft „kompakt sein“ die Intervalle $[-1, 1]$ und $(-1, 1)$ und die Eigenschaft „wegzusammenhängend sein“ eine Parabel topologisch von einer Hyperbel. Anders als in diesen Beispielen ist die topologische Invariante, die den Quanten-Hall-Zustand vom Vakuum unterscheidet, eine ganze Zahl, so wie eine ganze Zahl, nämlich die Lochanzahl, Kaffeetasse und Orange trennt. Diese Zahl heißt Chern-Zahl. Die Anzahl der Löcher – in diesem Zusammenhang auch Geschlecht genannt – eines Donuts kann als Integral über eine lokale Krümmungsform berechnet werden. Das ist ein tiefgreifendes, mathematisches Resultat, verbindet es doch algebraische und geometrische Eigenschaften in einer Gleichung. Die allgemeinste Formulierung

dieser Aussage firmiert unter der Bezeichnung Index-Theorem, der hier betrachtete Spezialfall heißt nach den Erstveröffentlichern Satz von Gauss-Bonnet [22]. Tatsächlich lässt sich auch die Chern-Zahl durch ein Integral über eine lokale Krümmungsform berechnen. Zunächst wird die Chern-Zahl für das Band m gemäß

$$n_m = \frac{1}{2\pi} \int_{\text{1.BZ}} d^2k \Omega_{k_x k_y}(\mathbf{k}). \quad (1.25)$$

definiert. Überraschenderweise zeigt sich, dass die hier stehende Krümmung nichts anderes als die Berry-Krümmung ist [23]. Durch Summation über alle besetzten Bänder erhält man die totale Chern-Zahl,

$$n = \sum_{m \text{ occ}} n_m. \quad (1.26)$$

Integrale der Form wie Gleichung (1.25) werden berechnet, um das Weyl-Semimetall zu charakterisieren, deshalb werden kurz einige Details diskutiert [24].

Bei adiabatischer Bewegung von Eigenzuständen eines parameterabhängigen Hamiltonoperators entlang geschlossener Kurven in Parameterraum \mathbf{R} unterscheiden sich Anfangs- und Endzustand um die Berryphase

$$\gamma_n = \oint_C d\mathbf{R} \cdot \mathcal{A}_n(\mathbf{R}) = \int_S d\mathbf{S} \cdot \boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{R}). \quad (1.27)$$

Die vektorwertigen Größen \mathcal{A} und $\boldsymbol{\Omega}$ heißen Berry-Zusammenhang bzw. Berry-Krümmung und berechnen sich gemäß

$$\mathcal{A}_n(\mathbf{R}) = i \left\langle n(\mathbf{R}) \left| \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}} n(\mathbf{R}) \right. \right\rangle, \quad (1.28)$$

$$\boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{R}) = \nabla \times \mathcal{A}_n(\mathbf{R}). \quad (1.29)$$

Die letzte Gleichung gilt nur für dreidimensionale Parameterräume, wie z.B. die drei Komponenten des Kristallimpulses. Andernfalls kann man einen allgemeineren Krümmungstensor aus dem Berry-Zusammenhang berechnen und in Gleichung 1.27 den allgemeinen Integralsatz von Stokes benutzen. Der Tensor

$$\Omega_{\mu\nu}^n(\mathbf{R}) = \frac{\partial}{\partial R^\mu} \mathcal{A}_\nu^n(\mathbf{R}) - \frac{\partial}{\partial R^\nu} \mathcal{A}_\mu^n(\mathbf{R}) \quad (1.30)$$

und der Zusammenhang Ω , der auch Berry-Krümmung heißt, hängen über den Levi-Civita-Tensor zusammen. Die formale Ähnlichkeit mit der Elektrodynamik legt eine Interpretation der Berry-Krümmung als Magnetfeld im Parameterraum nahe, dem die Elektronen wegen der Abhängigkeit der Wellenfunktion von der

Position im \mathbf{k} -Raum unterliegen. Besonders anschaulich wird dies bei der Betrachtung der semiklassischen Dynamik von Wellenpaketen in Kristallen [25]. Die Berry-Krümmung ist eine eichinvariante Größe. Für den Berry-Zusammenhang gilt das nicht. Im Gegensatz zur Berry-Phase, die nur für geschlossene Kurven definiert ist, ist die Krümmung eine lokale Größe, die die geometrischen Eigenschaften des Parameterraumes beschreibt. Nützlich für die numerische Auswertung der Berry-Krümmung ist noch der Ausdruck

$$\Omega_{\mu\nu}^n(\mathbf{R}) = i \sum_{n' \neq n} \frac{\langle n | \partial H / \partial R^\mu | n' \rangle \langle n' | \partial H / \partial R^\nu | n \rangle - (\nu \leftrightarrow \mu)}{(\epsilon_n - \epsilon_{n'})^2}, \quad (1.31)$$

Der Vorteil dieser Formulierung ist, dass man wegen der wegfallenden Ableitung der Wellenfunktion zur Auswertung eine beliebige Wahl der globalen Phase treffen kann. Numerische Diagonalisierungsroutinen garantieren keine stetige Wahl der Phase für verschiedene Punkte im Parameterraum [24]. Gleichung (1.31) wird später zur Berechnung von topologischen Invarianten benutzt. Offenbar divergiert die Berry-Krümmung bei entarteten Zuständen mit $\epsilon_n = \epsilon'_n$. Dies wird bei der Diskussion des Weyl-Semimetalls genauer diskutiert.

Die topologische Invariante, die den Quanten-Hall-Zustand charakterisiert, ist also nichts anderes als der Fluss der Berry-Krümmung durch die Brillouin-Zone. Thouless, Kohmoto, Nightingale und den Nijs [26] konnten zwei Jahre nach Entdeckung des QHE zeigen, dass die Hall-Leitfähigkeit unter Anwendung der Kubo-Formel die Form aus Gleichung (1.25) annimmt. Die Quantisierung der Leitfähigkeit kann so mit der Existenz einer topologischen Invarianten erklärt werden. Man beachte, dass die Invariante – auch TKNN-Invariante genannt – die Integration über die ganze Brillouin-Zone enthält und deshalb sicherlich nicht lokal ist. Die Landau-Theorie kann diesen Zustand also nicht beschreiben. Zwar ist der Integrand eine lokale Größe, das Ergebnis ist jedoch eine globale Eigenschaft, genau wie es für die Anzahl der Löcher bei Kaffeetasse und Donut unerheblich ist, dass sie sich im Detail unterscheiden. Zum Quanten-Hall-Zustand äquivalente Systeme mit nicht verschwindender Hall-Leitfähigkeit werden auch Chern-Isolatoren genannt.

Bevor die physikalischen Konsequenzen topologischer Invarianten diskutiert werden, sei noch ein Kommentar zu Gleichung (1.25) gegeben. In ihrer einfachen Form verbergen sich bedeutende Erkenntnisse moderner Differentialgeometrie. Es ist erstaunlich, dass sich Hamiltonoperatoren überhaupt durch Chern-Zahlen charakterisieren lassen. Diese gehen in Spezialfällen aus sogenannten Chern-Klassen hervor, die ihrerseits topologische Invarianten von Hauptfaserbündeln sind, also einem auf den ersten Blick anderem Teilbereich der Mathematik entstammen [22]. Tatsächlich lässt sich über den Umweg der Eigenvektoren eines para-

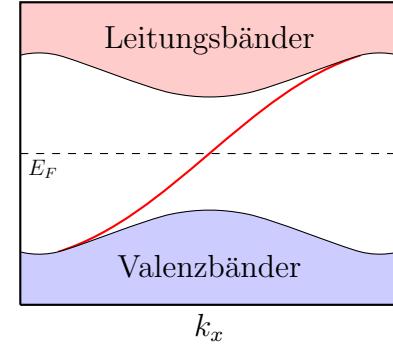


Abbildung 1.8: Bandstruktur eines Quanten-Hall-Systems mit halbunendlicher Geometrie (also ein Rand). Genau ein Randzustand kreuzt die Fermi-Energie. Abbildung nach [20].

meterabhangigen Hamiltonoperators ein solches Hauptfaserbündel konstruieren und man kann zeigen, dass die hierzu gehörenden Chern-Zahlen die Homotopieklassen charakterisieren.

Welche Auswirkungen hat die Existenz topologischer Invarianten auf die physikalischen Eigenschaften des Systems? Eine Konsequenz wurde bereits identifiziert: Bemerkenswerterweise taucht die topologische Invariante in linearen Antwortfunktionen des Systems auf. Folglich hängt, wie in [17] beschrieben, die Hall-Leitfähigkeit überhaupt nicht von Details der betrachteten Probe ab. Lediglich globale Eigenschaften gehen in σ_{xy} ein, während kleine Änderungen am System diese Größe unverändert lassen. Avron, Zeiler und Simon [27] haben sogar gezeigt, dass in dem zweidimensionalen Quanten-Hall-System *jede* quantisierte Größe eine Funktion der TKNN-Invarianten ist. Topologische Materialien zeigen also typischerweise stabile, quantisierte Antwortfunktionen. Die bemerkenswerteste Eigenschaften von Chern-Isolatoren ist aber die Existenz von leitenden Oberflächenzuständen. Generell wird hier die Leitfähigkeit diskutiert, obwohl die betrachteten Systeme Isolatoren sind. Die Existenz der Randzustände löst dieses Paradoxon. In jeder experimentellen Realisierung sind solche Ränder unvermeidlich. Verständlich wird die zwingende Existenz der Randzustände bei der Betrachtung zweier Isolatoren mit unterschiedlicher Chern-Zahl n_1 und n_2 , die einen gemeinsamen Rand besitzen. Die Bewegung vom Inneren des ersten Isolators in Richtung des Randes und weiter in das Innere des zweiten Isolators dann ändert offenbar die Chern-Zahl. Gleichzeitig kann sich diese topologische Invariante aber überhaupt nicht ändern, außer die Bandlücke schließt und öffnet sich wieder. Zwischen diesen beiden Isolatoren, eben am Rand, muss also ein Zustand existieren, dessen Dispersionskurve die Fermi-Energie schneidet. Es ergibt sich das Spektrum aus Abbildung 1.8. Die Randzustände sind chiral im Sinne, dass sie entlang des Randes nur in eine Richtung propagieren [20]. Für die Argumentation ist es

irrelevant, ob eine der Phasen topologisch trivial ist. Das Argument gilt immer, wenn sich die Chern-Zahlen der beiden Materialien unterscheidet, man findet also auch geschützte Randzustände zwischen Chern-Isolatoren mit unterschiedlicher Hall-Leitfähigkeit. Ein anderes Argument, das die Existenz von Randzuständen erklärt, geht zurück auf Laughlin [28], [29]. Man betrachtet zweidimensionale System mit der Geometrie eines Zylindermantels und zeigt, dass bei Inversion des Flusses parallel zur Zylinderachse Elektronen von einem Rand des Zylindersmantels zum entgegengesetzten transportiert werden. Die Randzustände erscheinen dann natürlicherweise in dem System als die Zustände, die bei diesem Prozess Elektronen aufnehmen bzw. abgeben.

Randzustände und quantisierte Antwortfunktionen sind also fundamentale Eigenschaften topologischer Materialien und gewöhnlich bestimmt ihre Existenz die Nicht-Trivialität von Isolatoren. Im übernächsten Abschnitt wird der Frage nachgegangen, ob diese Schlüsseleigenschaften auch für topologische Materialien ohne Bandlücke existieren.

1.3.1 Topologische Isolatoren

Ein Meilenstein der Erforschung topologischer Materialien ist die Entdeckung des Quanten-Spin-Hall-Effektes [2]. Kane und Mele [2] betrachten den Einfluss der Spin-Bahn-Kopplung auf die elektronische Struktur von Graphen und finden Randzustände topologischen Ursprungs, obwohl das System die Zeitumkehrsymmetrie \mathcal{T} erhält und die Berry-Phase deshalb verschwinden muss. An jedem Rand existiert ein Paar von Zuständen, deren Impulse mit ihrem Spin gekoppelt sind. Zustände mit unterschiedlichen Spins propagieren in entgegengesetzte Richtungen. Diese Eigenschaft wird helikal genannt. In Spezialfällen lässt sich ein solcher Quanten-Spin-Hall-Zustand als zwei identische Kopien des Haldane-Modells [30] erklären, also als zwei Quanten-Hall-Zustände, wobei jede Kopie zu einer Spinsorte gehört. Die verschwindende Berry-Phase bedingt natürlich auch das Verschwinden der TKNN-Invarianten und trotzdem ist der Zustand topologisch. Offenbar muss es noch andere Möglichkeiten geben, Systeme mit \mathcal{T} -Symmetrie topologisch zu klassifizieren und damit auch andere topologische Invarianten.

Die Existenz einer solchen Invarianten lässt sich tatsächlich zeigen. Man nennt diese \mathbb{Z}_2 -Invariante. Zur Erklärung dieser Invarianten kann man beliebig tief in entsprechenden mathematischen Theorien versinken (etwa der K-Theorie mit lokalen Koeffizienten), wir versuchen uns stattdessen aber an einer anschaulichen Erklärung des Phänomens [31]. Dazu wird zunächst der Einfluss von \mathcal{T} -Invarianz und Spin-Bahn-Kopplung auf Bandstrukturen wiederholt. Ohne Berücksichtigung der Spin-Bahn-Kopplung ist die aus dem Kramers-Theorem folgende Entartung

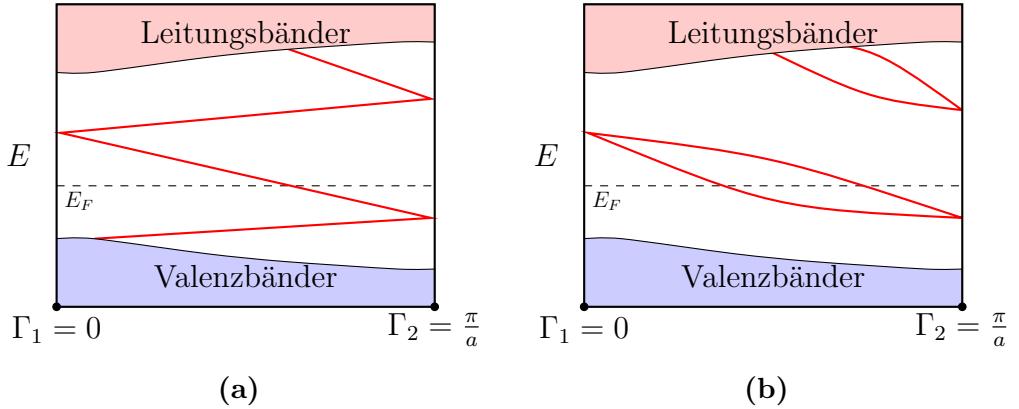


Abbildung 1.9: Mögliche Oberflächenzustände \mathcal{T} -invarianter Systeme. In (a) können die Zustände nicht als ganzes aus der Bandlücke geschoben werden, in (b) ist das möglich. Abbildung nach [20].

für \mathcal{T} -invariante Systeme lediglich die triviale Bandentartung für \uparrow - und \downarrow -Spin. Weitreichende Konsequenzen ergeben sich erst, wenn die Spin-Bahn-Kopplung ebenfalls berücksichtigt wird. Abbildung 1.9 zeigt zwei mögliche Bandstrukturen eines \mathcal{T} -invarianten Hamiltonoperators für eine endliche Geometrie [20]. Das Kontinuum der Bänder im Inneren des Festkörpers wird von der Bandlücke unterbrochen. Innerhalb der Bandlücke liegen Oberflächenbänder. Nur die Hälfte der Brillouin-Zone ist dargestellt, \mathcal{T} -Symmetrie erfordert, dass sich die zweite Hälfte als Spiegelbild ergibt. An denjenigen Punkten der Brillouin-Zone, die sich unter Anwendung des Zeitumkehroperators lediglich um einen reziproken Gittervektor ändern, schneiden sich zwei Bänder als Folge des Kramers-Theorems. Diese Punkte kürzen wir mit TRIM (*time reversal invariant momenta*) ab. Überall sonst führt die Spin-Bahn-Kopplung zur Aufspaltung der Bänder. Es gibt jetzt zwei verschiedene Möglichkeiten, wie die Bänder die beiden TRIM verbinden: Entweder paarweise, so wie in 1.9(b) zu sehen oder wie in 1.9(a), wo die Oberflächenbänder an jedem Kreuzungspunkt nicht erneut zusammenlaufen. Nur die erste Möglichkeit erlaubt es, die Bänder komplett aus der Bandlücke zu schieben und die Zustände ohne Bandlücke zu eliminieren. In 1.9(a) geht das nicht. Die beiden Möglichkeiten unterscheiden sich durch die Anzahl der Schnittpunkte der Bänder mit der Fermi-Energie. Relevant ist sogar nur, ob diese Anzahl gerade (Abbildung 1.9(b)) oder ungerade ist (Abbildung 1.9(a)) ist. Damit ist auch klar, warum die Bezeichnung \mathbb{Z}_2 -Invariante gewählt wird. Da zu jedem Zustand mit Impuls k_x ein Kramerpartner mit Impuls $-k_x$ existiert, kann die \mathbb{Z}_2 -Invariante, oder vielmehr ihre Änderung $\Delta\nu$ an einer Randfläche, mit der Anzahl der Kramers-Paare auf diesem Rand, die die Fermi-Energie schneiden, N_K , in Verbindung gebracht werden:

$$N_k = \Delta\nu \bmod 2. \quad (1.32)$$

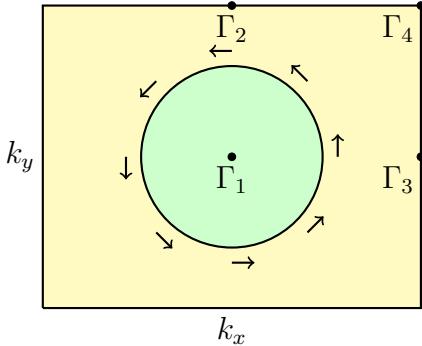


Abbildung 1.10: Die Fermi-Linie eines starken topologischen Isolators umschließt eine ungerade Anzahl an Dirac-Punkten. Die Erwartungswerte der Spins rotieren bei Bewegung entlang der Fermi-Linie, eine Möglichkeit wird durch die dargestellten Pfeile symbolisiert.

Die topologische Charakterisierung des Quanten-Spin-Hall-Zustandes lässt sich auf höhere Dimensionen verallgemeinern. Für die Charakterisierung topologischer Isolatoren in drei Dimensionen werden vier Invarianten gebraucht, $(\nu_0; \nu_1 \nu_2 \nu_3)$ [32], [33]. Genau wie die \mathbb{Z}_2 -Invariante in zwei Dimensionen können auch diese am einfachsten über den Zusammenhang von Zuständen im Inneren und Rand- bzw. hier Oberflächenzuständen verstanden werden. Die Oberflächen-Brillouin-Zone eines dreidimensionalen Isolators ist zweidimensional und enthält vier TRIM. Für diese Impulse existieren in der Bandstruktur Dirac-Punkte. Solche Dirac-Punkte ergeben sich auf allen Oberflächen \mathcal{T} -invarianter Systeme mit Spin-Bahn-Wechselwirkung, die topologische Nicht-Trivialität ergibt sich aus der Art der Verbindung zwischen ihnen (Abbildung 1.9) [34]. Die Information darüber ist in den vier Invarianten enthalten. Wir betrachten eine spezielle Konfiguration genauer: Für $\nu_0 = 1$ umschließt die Fermi-Linie der Oberflächen-Brillouin-Zone eine ungerade Anzahl an Dirac-Punkten, so wie in Abbildung 1.10. Diese Phase heißt starker topologischer Isolator. Die Oberfläche eines solchen Isolators ist ein topologisches Metall. Zeitumkehrsymmetrie erfordert, dass Zustände für Impulse \mathbf{k} und $-\mathbf{k}$ entgegengesetzten Spin haben müssen. Die Erwartungswerte der Spins rotieren deshalb wenn \mathbf{k} entlang der Fermi-Linie bewegt wird. Bei geschlossener Bewegung um einen Dirac-Punkt, erwirbt ein Elektron eine Berry-Phase von π [20]. Details hängen von der Orientierung der Oberfläche ab [35].

Es verbleibt die Frage, wie die topologischen Invarianten berechnet werden können. Es gibt verschiedene Darstellung der Invarianten [32] [33]. Sehr einfach wird die Rechnung, wenn der betrachtete Festkörper inversionssymmetrisch ist.

Fu und Kane [34] haben gezeigt, dass sich die Invariante ν_0 gemäß

$$(-1)^{\nu_0} = \prod_{i=1}^8 \delta_i \quad (1.33)$$

berechnen lässt. Das Produkt läuft dabei über die acht TRIM Γ_i der dreidimensionalen Brillouin-Zone des Festkörpers. Diese sind

$$\Gamma_{\{n_i\}} = \frac{n_i}{2} \mathbf{G}_i, \quad (1.34)$$

mit den reziproken Gittervektoren \mathbf{G}_i und $n_i \in \{0, 1\}$. An diesen Punkten sind die Bloch-Zustände $u_m(\Gamma_i)$ ebenfalls Eigenzustände des Paritätsoperators \mathcal{P} mit Eigenwerten $\xi(\Gamma_i)$. Hieraus ergeben sich die δ_i in Gleichung (1.33) gemäß der Beziehung

$$\delta_i = \prod_{m=1}^N \xi_{2m}(\Gamma_i), \quad (1.35)$$

wobei das Produkt über die besetzten Kramerspaare läuft. ξ_{2m} ist der Eigenwert des Paritätsoperators zum Band $2m$, der wegen der Kramersentartung mit ξ_{2m-1} identisch ist. Das Resultat ist bemerkenswert, weil es die topologische Charakterisierung beliebiger inversionssymmetrischer topologischer Isolatoren gestattet, ohne dass globale Eigenschaften der Energiebänder bekannt sein müssen. Lediglich Eigenschaften an den TRIM werden ausgenutzt. Für die Varianten $(\nu_1 \nu_2 \nu_3)$ gelten ähnliche Formeln:

$$(-1)^{\nu_k} = \prod_{\substack{n_k=1 \\ n_j \neq k=0,1}} \delta_{(i=n_1 n_2 n_3)}. \quad (1.36)$$

Das Produkt beinhaltet also nur noch die vier Werte δ_i , für die die zugehörigen Γ_i in der gleichen Ebene liegen. Wir werden später sehen, dass die möglichen Werte der ξ von der Wahl des Inversionszentrums abhängen. Für deren Produkte, die die Topologie der Phase charakterisieren, gilt das natürlich nicht.

1.3.2 Weyl-Semimetalle

In meiner Arbeit habe ich immer versucht, das Wahre mit dem Schönen zu vereinen; wenn ich mich über das Eine oder das Andere entscheiden musste, habe ich stets das Schöne gewählt.

Hermann Weyl

Auf Hermann Weyl geht die Entdeckung zurück, dass die vierkomponentige

Dirac-Gleichung im Falle masseloser Teilchen entkoppelt und in zwei unabhängige Gleichungen zerfällt [36]:

$$i(\partial_0 - \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\nabla}) \psi_L = 0 \quad (1.37)$$

$$i(\partial_0 + \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\nabla}) \psi_R = 0. \quad (1.38)$$

ψ_L und ψ_R sind links- bzw. rechtshändige Weyl-Spinoren. Diese Gleichung heißt Weyl-Gleichung und in ihrem ursprünglichen Sinne sollte sie masselose und chirale Elementarteilchen beschreiben. Spätestens mit Entdeckung der Masse von Neutrinos schien dieser Teil der Arbeit Weyls eher dem zweiten Teil des obigen Zitates zu genügen. Jedoch ist es 2015 – und damit mehr als 80 Jahre nach ihrer ersten Beschreibung – erstmals experimentell gelungen, Fermionen nachzuweisen, deren Verhalten obiger Gleichung genügt [37]. Dabei handelt es sich aber keineswegs um Hoch-Energie-Experimente. Vielmehr sind die beobachteten Fermionen Quasiteilchen oder Niedrig-Energie-Anregungen in bestimmten Phasen von Festkörpern. Die Phase wird Weyl-Semimetall genannt und ist nicht nur die erste Realisierung eines Weyl-Fermions, sondern zugleich ein Beispiel einer Phase, die nicht isolierend ist, aber trotzdem topologische Eigenschaften aufweist. In Weyl-Semimetallen verhalten sich die Quasiteilchen also wie masselose Fermionen.

Wir gehen in diesem Kapitel zwei wesentlichen Fragen nach: Wie kann man über die topologische Klassifikation von Isolatoren hinausgehen und auch Systeme ohne Bandlücke mit Mitteln der Topologie beschreiben? Wie übertragen sich dann die Schlüsseleigenschaften topologischer Isolatoren – im wesentlichen quantisierte Antwortfunktionen und Oberflächenzustände – auf leitende Systeme? Das enge Zusammenspiel des zweidimensionalen Quanten-Hall-Zustandes mit dem Weyl-Semimetall wird zur Klärung dieser Fragen beitragen. Diese Einführung ist an [38] angelehnt.

Weyl-Semimetalles sind dreidimensionale Materialien, bei denen sich Valenz- und Leitungsband an einzelnen Punkten in der Brillouin-Zone treffen. Entscheidend ist, dass die Bänder nicht entartet sein dürfen. Wegen

$$E_\sigma(\mathbf{k}) \stackrel{\mathcal{I}}{=} E_\sigma(-\mathbf{k}) \stackrel{\mathcal{T}}{=} E_{-\sigma}(\mathbf{k}) \quad (1.39)$$

muss dafür entweder Zeitumkehr- (\mathcal{T}) oder Inversionssymmetrie (\mathcal{I}) gebrochen werden (σ und $-\sigma$ bedeuten im Falle von Spin-Bahn-Kopplung einfach zwei Eigenwerte einer 2×2 Matrix). In Festkörpern geschieht dies etwa durch Inversionssymmetrie brechende Materialien oder durch magnetische Ordnung (\mathcal{T}). In

der Nähe der Kreuzungspunkte kann das System für kleine Energien durch den effektiven Hamiltonoperator

$$H = \mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{q} \mathbb{1} + \sum_i^3 \mathbf{v}_i \cdot \mathbf{q} \sigma_i, \quad (1.40)$$

beschrieben werden. Interpretieren wir in Gleichung (1.38) den zweiten Summanden als Hamiltonoperator, dann beschreibt Gleichung (1.40) eine anisotrope Version dieses Operators. Gleichung (1.40) ergibt sich durch Entwicklung des Hamiltonoperators um den Kreuzungspunkt \mathbf{k}_0 herum. Diese Kreuzungspunkte heißen Weyl-Punkte. Es gilt $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}_0$. Die Energiedispersion hat die Form eines Kegels, $E = \mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{q} \pm \sqrt{\sum_{i=1}^3 (\mathbf{v}_i \cdot \mathbf{q})^2}$. So wie es je eine Weyl-Gleichung für die Spinoren unterschiedlicher Chiralität gibt, ist es möglich, den Weyl-Punkten eine Chiralität oder chirale Ladung zuzuordnen. Diese ergibt sich mit den \mathbf{v}_i aus Gleichung (1.40) gemäß

$$\chi = \text{sgn}(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{v}_2 \times \mathbf{v}_3). \quad (1.41)$$

Die so berechnete Chiralität entspricht gerade dem Vorzeichen vor der Weyl-Gleichung nach der Transformation auf ein Koordinatensystem in dem die \mathbf{v}_i isotrop sind.

Stabilität von Weyl-Punkten

Graphen kann als zweidimensionales Analogon zu den Weyl-Semimetallen aufgefasst werden, in dem Sinne, dass ihre Spektren beide lineare Anregungen ohne Energielücke vorhersagen. Der Bandkreuzungspunkt in Graphen wird durch \mathcal{T} - und \mathcal{I} -Symmetrie geschützt. Zusätzliche Terme im Hamiltonoperator, die eine dieser Symmetrie brechen, öffnen eine Lücke im Bandspektrum und verleihen den Fermionen damit eine effektive Masse. Bei Weyl-Punkten ist es durch das Hinzufügen beliebiger Störungen nicht möglich, eine Lücke im Anregungsspektrum zu öffnen. Gegenüber Graphen zeichnen sich die Berührungs punkte durch größere Stabilität aus. Die Stabilität ist topologischen Ursprungs. Zunächst wird aber ein Plausibilitätsargument betrachtet [1]. In Gleichung (1.40) tauchen bereits alle Pauli-Matrizen σ_i auf. Es gibt keine weitere Matrix, die mit den anderen kommutiert. Beim Versuch, der Gleichung einen Masseterm hinzuzufügen, addieren wir also lediglich Linearkombinationen der Matrizen, die bereits in Gleichung (1.40) enthalten sind. Wir gehen etwas weiter ins Detail [38]: Der Operator aus (1.40) kann bei Vernachlässigung der konstanten Energieverschiebung als

$$\begin{pmatrix} \delta E & x + iy \\ x - iy & -\delta E \end{pmatrix} \quad (1.42)$$

geschrieben werden. Die Differenz der beiden Energieeigenwerte, $\Delta E = \sqrt{\delta E^2 + x^2 + y^2}$ verschwindet beim Kreuzungspunkt. Alle drei quadratischen Ausdrücke im Radikanden müssen verschwinden. Dazu benötigt man drei Parameter – die drei Komponenten von \mathbf{k} – um die resultierenden Gleichungen zu lösen. Ist eine Lösung gefunden, dann schieben kleine Störungen im Hamiltonoperator diese lediglich an einen anderen Punkt im \mathbf{k} -Raum. Man beachte, dass die Dimension des Materials entscheidend ist. Die Argumentation gilt nicht für 4×4 -Matrizen, die für die adäquate Beschreibung eines Kreuzungspunktes entarteter Bänder nötig wären. Ein Masseterm ließe sich leicht hinzufügen, etwa durch Kopplung der auftauchenden 2×2 -Blockmatrizen. Ein Kreuzungspunkt entarteter Bänder kann als Paar von Weyl-Punkten unterschiedlicher Chiralität interpretiert werden, die gemeinsam nicht stabil sind. Dies gilt nur, wenn sie durch Brechen von \mathcal{I} - oder \mathcal{T} -Symmetrie im Impulsraum getrennt werden. Eine systematische Untersuchung der Entstehung von Weyl-Punkten durch Brechung entsprechender Symmetrien in einem durch eine 4×4 -Matrix beschriebenen Hamiltonoperator findet sich in [39].

Um topologische Argumente für die Stabilität zu finden, wird jetzt eine vereinfachte Variante von Gleichung (1.40)

$$H = \mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\sigma} \quad (1.43)$$

diskutiert. Die Berry-Krümmung berechnet sich zu

$$\boldsymbol{\Omega} = \frac{1}{2} \frac{\mathbf{k}}{k^3}. \quad (1.44)$$

Dieser Ausdruck hat die Form des Feldes, den ein Monopol im \mathbf{k} -Raum am Ort der Bandkreuzung generiert. Für einen Weyl-Punkt entgegengesetzter Chiralität χ wechselt in Gleichung (1.44) das Vorzeichen. Schon in Gleichung (1.31) ist aufgefallen, dass die Berry-Krümmung für entartete Energien divergiert. Das Integral der Berry-Krümmung über eine Kugelschale liefert die Summe der Chiralitäten der in dieser Schale eingeschlossene Weyl-Punkte. Da die Weyl-Punkte als Quellen und Senken der Berry-Krümmung wirken, ist die Bezeichnung magnetischer Monopol oder Igel (*hedgehog*) im reziproken Raum naheliegend. Die Stabilität von Weyl-Punkten folgt mit dem Gaußschen Gesetz. Jede den Weyl-Punkt umschließende Oberfläche schützt die eingeschlossenen Ladung. Sind innerhalb der Gaußschen Fläche Weyl-Punkte unterschiedlicher Chiralität eingeschlossen, können diese paarweise annihilieren, ohne die Ladungserhaltung zu verletzen. Die Gaußsche Fläche wird genauer betrachtet: Durch diese Untermannigfaltigkeit der Brillouin-Zone fließt quantisiert Berry-Krümmung. Außerdem ist für kei-

nen Punkt auf dieser Oberfläche die Energielücke geschlossen. Per Konstruktion liegt der einzige Punkt, an dem die Lücke schließt, im Inneren der Oberfläche. Interpretiert man die Oberfläche jetzt als zweidimensionale Brillouin-Zone, dann hat das so konstruierte System die Eigenschaften eines Chern-Isolators. Dieser Quanten-Hall-Zustand vererbt seine Topologie auf das höherdimensionale Weyl-Semimetall. Die topologische Invariante für die Weyl-Phase entspricht der Chern-Zahl dieses Isolators. Das Integrationsgebiet ist eine beliebig geformte Fläche, die den Weyl-Punkt umschließt:

$$\chi = \int d\mathbf{S}(\mathbf{k}) \Omega(\mathbf{k}). \quad (1.45)$$

Wählt man als Oberfläche die Grenzen der Brillouin-Zone, dann muss der Fluss der Berry-Phase insgesamt verschwinden. Das ist nur garantiert, wenn eine gleiche Anzahl an Weyl-Punkten positiver und negativer Chiralität in der Brillouin-Zone liegt. Diese Aussage ist unter dem Namen *fermion doubling theorem* oder Nielsen-Ninomiya-Theorem bekannt und wurde 1981 mit Methoden aus der Homotopietheorie bewiesen [40], [41]. Weyl-Punkte kommen also immer in Paaren entgegengesetzter Chiralität vor. Wenn in der Weyl-Phase die Zeitumkehrssymmetrie nicht gebrochen wird, dann folgt aus der Transformation des Weyl-Hamiltonoperators für den Weyl-Punkt am Ort \mathbf{k}_0

$$\mathcal{T}H\mathcal{T}^{-1} = \mathcal{T}(\pm\sigma(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0))\mathcal{T}^{-1} = \pm\sigma(\mathbf{k} + \mathbf{k}_0). \quad (1.46)$$

Aus der Existenz eines Weyl-Punktes am Ort \mathbf{k}_0 folgt die Existenz eines Weyl-Punktes gleicher Chiralität bei $-\mathbf{k}_0$. Nielsen und Ninomiya sagen für diesen Fall die Existenz zweier weiterer Weyl-Punkte entgegengesetzter Chiralität voraus. Eine analoge Rechnung für erhaltene Inversionssymmetrie zeigt, dass jeder Weyl-Punkt bei \mathbf{k}_0 einen Weyl-Punkt entgegengesetzter Chiralität bei $-\mathbf{k}_0$ bedingt. Das *fermion doubling theorem* ist automatisch erfüllt [42]. Ohne Brechung einer der beiden fundamentalen Symmetrien ergibt sich

$$\mathcal{T}\mathcal{I}H\mathcal{I}^{-1}\mathcal{T}^{-1} = \mp\sigma(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0). \quad (1.47)$$

Zwei Weyl-Punkt entgegengesetzter Chiralität koexistieren also am gleichen Punkt der Brillouin-Zone und eine kleine Kopplung führt zum Öffnen der Bandlücke. Weyl-Punkte haben nur dann wohldefinierte Koordinaten, wenn der betrachtete Kristall echt translationssymmetrisch ist. Deshalb sind Unordnungseffekte in der bisherigen Betrachtung ausgeschlossen. Eine mögliche Konsequenz von Unordnung ist das Öffnen einer Energielücke durch Streuprozesse zwischen Weyl-Punkten [43]. Die bisherige Argumentationslinie zur Stabilität von Weyl-Punkten

lässt sich für wechselwirkende System in beliebigen Dimensionen erweitern [44], [45]. Dazu betrachtet man den Propagator

$$G_{i'\sigma'}^{i\sigma} = \langle \psi_{i\sigma}(0,0) \psi_{i'\sigma'}^\dagger(\mathbf{k},\omega) \rangle. \quad (1.48)$$

Anregungen bei $\omega = 0$ entsprechen Polstellen des Propagators oder Nullstellen seines Inversen. Die Dimension der Untermannigfaltigkeit, auf der der inverse Propagator verschwindet, legt fest, ob Fermi-Flächen, -Linien oder -Punkte vorliegen. Man untersucht die Stabilität dieser Nullstellen. Der mathematische Teilbereich der K-Theorie erlaubt es, das Ergebnis elegant zusammenzufassen. Fermi-Flächen der Codimension p im Impulsraum sind genau dann stabil, wenn p ungerade ist und instabil für gerade p . Dieses sich wiederholende Schema stabiler und instabiler Fermi-Flächen mit steigender Dimension ist ein Beispiel für die sogenannte Bott-Periodizität. Für $d = 3$ ergeben sich also stabile Weyl-Punkte.

Oberflächenzustände von Weyl-Semimetallen

Auch für Systeme ohne Bandlücke können also topologische Invarianten gefunden werden. Jetzt wird untersucht, ob es zu den Schlüsseleigenschaften topologischer Isolatoren in der Weyl-Phase Entsprechungen gibt. Zunächst werden Oberflächenzustände betrachtet. Tatsächlich findet man die verblüffende Eigenschaft, dass der Schnitt der Oberflächenbänder mit der Fermi-Energie einen Bogen bilden, *Fermi-Arc* genannt. Diese Bögen beginnen bei der Projektion eines Weyl-Punktes mit positiver (negativer) Chiralität auf die zweidimensionale Brillouin-Zone der Oberfläche und enden bei Projektionen von Weyl-Punkten entgegengesetzter Chiralität [4]. Diese unkonventionellen Oberflächenzustände erklären sich wiederum am einfachsten aus dem Zusammenhang zwischen Chern-Isolatoren und Weyl-Semimetallen. Oberflächen, die Weyl-Punkte umschließen, sind Chern-Isolatoren. Als solche besitzen sie chirale Randzustände. Die Erklärung der Fermi-Arcs reduziert sich auf eine geschickte geometrische Konstruktion, die es gestattet, die Randzustände des zweidimensionalen Quanten-Hall-Zustandes mit den Oberflächenzuständen der Weyl-Phase zu identifizieren. Präsentiert werden hier die beiden gängigen äquivalenten Argumente. Wir beginnen mit der in Abbildung 1.11(a) skizzierten Argumentation [4]. Man betrachtet eine geschlossene Kurve auf der von k_x und k_y aufgespannten Oberflächen-Brillouin-Zone, die die Projektion eines Weyl-Punktes einschließen soll und zeigt, dass irgendwo auf dieser Kurve ein Oberflächenband die Fermi-Energie schneiden muss. Der Einfachheit halber sei die Kurve der durch $\lambda \in (0, 2\pi]$ parametisierte Kreis. Dazu betrachten wir ein beliebiges k_z . Dann ergibt sich für das Spektrum in Abhängigkeit von \mathbf{k}_λ – je nach Wahl von k_z – zum Beispiel der abgebildete Kegel. Die Schnittmenge von Zylinder und

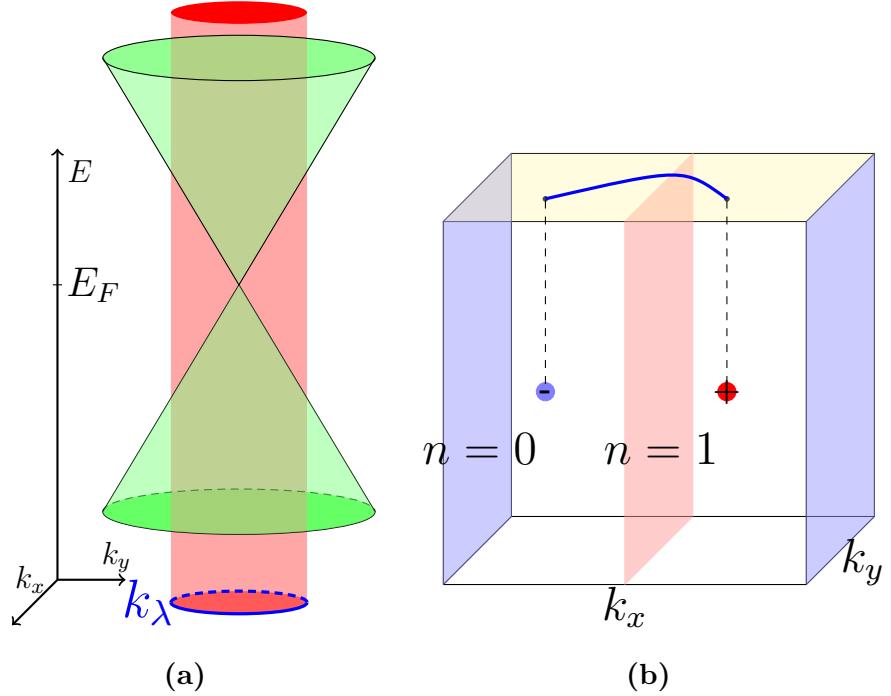


Abbildung 1.11: Ursprung der Fermi-Arcs als Randzustand geeigneter gewählter Chern-Isolatoren.

Kegel bildet für festes k_z einen Ausschnitt des Spektrums von $H(\mathbf{k}_\lambda, k_z)$. Der Hamiltonoperator auf diesem Unterraum ist wiederum der eines zweidimensionalen topologischen Isolators mit den beiden Impulsen λ und k_z . Den einzigen Punkt, an dem die Bandlücke schließt, haben wir per Definition von \mathbf{k}_λ ausgespart. Für einen Grenze bei $z = 0$ erwartet man einen chiralen Randzustand auf dem Rand des Unterraums, also gerade entlang des Kreises der durch \mathbf{k}_λ beschrieben wird. Wird das Spektrum auf dem entrollten Zylindermantel betrachtet, dann ergibt sich das Bild 1.8. Für jede Wiederholung dieser Konstruktion für beliebige Radien der Kreise erhalten wir einen solchen Randzustand. Ist der Radius so groß, dass die Projektionen zweier Weyl-Punkte unterschiedlicher Chiralität eingeschlossen werden, dann hat das Untersystem $H(\mathbf{k}_\lambda, k_z)$ die Hall-Leitfähigkeit null und deshalb keine geschützten Randzustände. Verbindet man die Schnittpunkte der Dispersionskurven aller erhaltenen Randzustände und der Fermi-Energie miteinander, dann ergibt sich ein Bogen, der die Projektionen zweier Weyl-Punkte verbindet. Alternativ argumentiert man mit Abbildung 1.11(b) [38], [46]. Betrachtet wird die dreidimensionale Brillouin-Zone eines Festkörpers. Da die Weyl-Punkte als Quellen und Senken der Berry-Krümmung agieren, verschwindet der Fluss durch zwei Ebenen der Brillouin-Zone (mit gleicher Orientierung), zwischen denen sich ein Monopol befindet, nicht. Deshalb unterscheiden sich die beiden Ebenen, in der Abbildung die blauen von der roten, durch ihre Chern-Zahl. Eine der beiden Ebenen, hier die rote, ist also ein Chern-Isolator. Für jedes feste k_x zwischen den

beiden Weyl-Punkten existiert ein Randzustand, wenn dem System eine Grenze parallel zur xy -Ebene gegeben wird. Die Randzustände auf allen Ebenen verbinden sich in der gelben Oberflächen-Brillouin-Zone zum eingezeichneten Fermi-Arc. Das Weyl-Semimetall erscheint hier als Stapelung von zweidimensionalen Systemen, die entweder topologisch trivial oder Quanten-Hall-Systeme sind [47]. Die Fermi-Arcs können auch als Bruchstücke einer konventionellen, geschlossenen Fermi-Linie aufgefasst werden, wobei unterschiedliche Hälften dieser Fermi-Linie auf unterschiedlichen Oberflächen des Weyl-Semimetalls lokalisiert sind, ein Modell zu dieser Sichtweise findet sich in [48].

Die chirale Anomalie

Neben den Fermi-Arcs gehört die chirale Anomalie zu den interessantesten Eigenschaften der Weyl-Semimette. Darunter versteht man die Verletzung der chiralen Symmetrie, also der Erhaltungssätze für die Teilchenzahlen positiver und negativer Chiralität. Betrachtet werde ein einzelner Weyl-Punkt mit Chiralität χ . Anlegen eines Magnetfeldes B in z -Richtung führt zur Ausbildung von Landau-Niveaus. Die Dispersionsrelation hängt von der Chiralität des Weyl-Punktes ab:

$$E_n = \pm \sqrt{k_z^2 + eBn}, \quad n \in \mathbb{N}, \quad (1.49)$$

$$E_0 = -\chi k_z. \quad (1.50)$$

Abbildung 1.12 zeigt das Spektrum. Im Folgenden sei $\chi = 1$. Bei niedrigen Temperaturen dominiert das Niveau E_0 die Eigenschaften des Systems. Wird ein zu B paralleles elektrisches Feld angelegt, wird die Änderung der Zustände durch

$$\hbar \dot{\mathbf{k}} = -eE \quad (1.51)$$

beschrieben. Das nullte Landau-Level ist chiral (Abbildung 1.12(a)). Durch Gleichung (1.51) wird beschrieben, dass am betrachteten Weyl-Punkt positiver Chiralität neue chirale Teilchen entstehen. Das scheinbare Paradoxon löst sich im Festkörper auf: Da die Dispersionskurve zu E_0 am Weyl-Punkt negativer Chiralität genau entgegengesetzte Steigung hat, werden dort Fermionen vernichtet. Insgesamt werden also nur Teilchen von einem Weyl-Punkt zum anderen gepumpt. Gälte das *fermion doubling theorem* nicht, wäre die Ladungserhaltung tatsächlich verletzt. Neben dieser Karikatur des Beweises der chiralen Anomalie finden sich natürlich noch genauere Herleitungen unter Ausnutzung feldtheoretischer Methoden [49], [46]. Die chirale Anomalie hat experimentell beobachtbare Konsequenzen bei den Transporteigenschaften, zum Beispiel fällt der Widerstand mit steigendem Magnetfeld ab. Der topologische Charakter von Response-Funktionen, deren

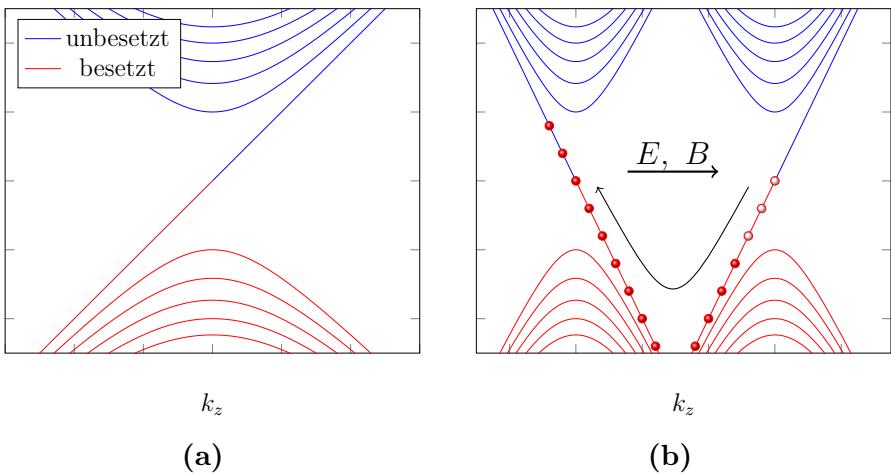


Abbildung 1.12: (a) Spektrum des Weyl-Hamiltonoperators mit angelegtem B -Feld. Das 0. Landaulevel ist chiral. (b) Pumpen von Fermionen an Weyl-Punkten negativer Chiralität zu Weyl-Punkten positiver Chiralität.

Ursprung in der chiralen Anomalie liegt wird in [46] diskutiert. Damit sind alle wesentlichen Charakteristiken topologischer Isolatoren auch in Weyl-Semimetallen wieder gefunden worden.

Beispiele für Weyl-Semimetalle

Die ersten Materialien, für die eine Weyl-Phase mit 24 Weyl-Punkten vorhergesagt wurde, sind die Pyrochloriridate im Jahre 2011 [4]. Gleichzeitig war diese Veröffentlichung der Anstoß zu einer explodierenden Forschungsaktivität zu Weyl-Semimetallen. Frühe theoretische Vorhersagen konstruieren Weyl-Semimetalle zum Beispiel durch abwechselndes Schichten topologischer und normaler Isolatoren [47] oder aus einem Tight-Binding-Modell wechselwirkungsfreier Fermionen unter Einfluss eines Magnetfeldes [42]. Beide Beispiele bestehen aus der minimalen Anzahl an Weyl-Punkten und erlauben deshalb eine besonders einfache Diskussion der wesentlichen Eigenschaften dieser topologischen Phasen. Hervorzuheben ist noch die Vorhersage einer Inversionssymmetrie brechenden Weyl-Semimetalphase in den Übergangsmetallmonopnictiden der Tantalarsenid-Klasse als weiterer Meilenstein [50], [51]. In Tantalarsenid konnten 2015, 86 Jahre nach der Veröffentlichung Weyls, erstmals Weyl-Fermionen gemessen werden [37]. Mittlerweise sind auch andere Materialien als Weyl-Phasen identifiziert, zum Beispiel Niobarsenid. Für viele wichtige Artefakte der Weyl-Semimetalle gibt es experimentelle Nachweise, zum Beispiel für Fermi-Arcs [52] oder die Besonderheiten magnetischer Transporteigenschaften [53], [54], [55].

2 Modell und Methoden

2.1 Der Hamiltonoperator

2.1.1 Symmetrien und Hüpfprozesse

Die mikroskopische Analyse der Iridiumatome auf dem Pyrochlordgitter legt als Ausgangspunkt einen Tight-Binding-Hamiltonoperator für ein einzelnes $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Kramers-Dublett nahe,

$$H = \sum_{ij} \sum_{\sigma\sigma'} c_{i\sigma}^\dagger h_{ij}^{\sigma\sigma'} c_{j\sigma'}, \quad (2.1)$$

wobei die erste Summe über die betrachteten Nachbarn (NN und NNN) läuft. In diesem Kapitel werden Bedingungen an die Matrixelemente $h_{ij}^{\sigma\sigma'}$ hergeleitet, die sich aus Symmetriegründen ergeben. Zunächst wird die Zeitumkehrsymmetrie \mathcal{T} betrachtet. Erzeuger und Vernichter transformieren sich unter Zeitumkehr gemäß

$$\mathcal{T}c_{j\sigma}\mathcal{T}^{-1} = i\tau_{\sigma\sigma'}^y c_{j\sigma'}, \quad (2.2)$$

mit der Paulimatrix τ^y . Man beachte das zusätzliche Vorzeichen bei der Transformation von $c_{j\downarrow}$. Mit der Forderung

$$H \stackrel{!}{=} \mathcal{T}H\mathcal{T}^{-1} = \sum_{ij} \mathcal{T}c_{i\sigma}^\dagger \mathcal{T}^{-1} \mathcal{T}h_{ij}^{\sigma\sigma'} \mathcal{T}^{-1} \mathcal{T}c_{j\sigma} \mathcal{T}^{-1} \quad (2.3)$$

erhält man durch Vergleich der Matrixelemente von h_{ij} die allgemeinste erlaubte Form

$$h_{ij} = t_{ij} \mathbb{1} + i\mathbf{v}_{ij} \cdot \boldsymbol{\sigma} \quad (2.4)$$

mit den vier reellen Hüpfparametern t_{ij} und $v_{ij}^x, v_{ij}^y, v_{ij}^z$.

Jetzt werden die Symmetrioperationen des Pyrochlordgitters betrachtet. Zunächst

werden Einschränkungen für NN-Hüpfprozesse diskutiert. Die Tetraederpunkte i und j spannen gemeinsam mit dem Mittelpunkt des Tetraeders eine Spiegelebene des Pyrochlordgitters auf. Der Hamiltonoperator muss invariant unter Spiegelungen σ_{ij} an dieser Ebene sein. Bei geeigneter Wahl des Inversionszentrums kann die Spiegelung für alle Paare i, j als Hintereinanderausführung von Inversion und Rotation um den Winkel π um die Achse senkrecht zu der Spiegelebene, also durch k und l mit $k, l \neq i, j$ dargestellt werden. Die Symmetrieroberation muss simultan im Orts- und im (Pseudo-)Spinraum durchgeführt werden. Die 2×2 -Matrix, die Hüpfprozesse zwischen den beiden Gitterplätzen, die die Spiegelebene aufspannen, beschreibt, lautet

$$(c_{i\uparrow}^\dagger, c_{i\downarrow}^\dagger) \begin{pmatrix} t + iz & ix + y \\ ix - y & t - iz \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{j\uparrow} \\ c_{j\downarrow} \end{pmatrix}. \quad (2.5)$$

Diese beiden Gitterplätze ändern sich durch die Spiegelung nicht. Deshalb muss dieser Ausdruck nach der Hintereinanderausführung von Inversion und Rotation mit sich selbst verglichen werden. Die Spinordrehung wird durch die Gruppe $SU(2)$ mit der Darstellung

$$U(\pi, \mathbf{n}) = \begin{pmatrix} -in_3 & -i(n_1 - in_2) \\ -i(n_1 + in_2) & in_3 \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

beschrieben. $c_{i\uparrow}^\dagger$ transformiert sich dann wie

$$c_{i\uparrow}^\dagger \longrightarrow -in_3 c_{i\uparrow}^\dagger - i(n_1 + in_2) c_{i\downarrow}^\dagger, \quad (2.7)$$

analog geht man für die anderen Operatoren vor. In Gleichung (2.5) werden die transformierten Operatoren eingesetzt. Man bringt das Resultat wieder auf die Form (2.5), mit einer neuen 2×2 -Matrix. Die Forderung nach Äquivalenz beider Matrizen resultiert in drei Gleichungen, die nach einigen Umformungen mit $\mathbf{v}_{ij} = (x, y, z)$ kompakt als

$$\mathbf{v}_{ij} = \mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{v}_{ij}) \quad (2.8)$$

geschrieben werden können. Der Vektor \mathbf{v}_{ij} aus Gleichung (2.4) ist also orthogonal zur Spiegelebene, die i und j enthält. Weitere Einschränkungen folgen aus der Spiegelsymmetrie nicht, insbesondere ergeben sich keine neuen Resultate, wenn die Transformation des Teils des Hamiltonoperators, der Hüpfprozesse zwischen k und l mit $k, l \neq i, j$ unter der Spiegelung an der Ebene die i und j enthält, betrachtet wird. Dies führt auf die Gleichungen

$$t_{ij} = t_{ji} \quad \text{und} \quad \mathbf{v}_{ij} = -\mathbf{v}_{ji}, \quad (2.9)$$

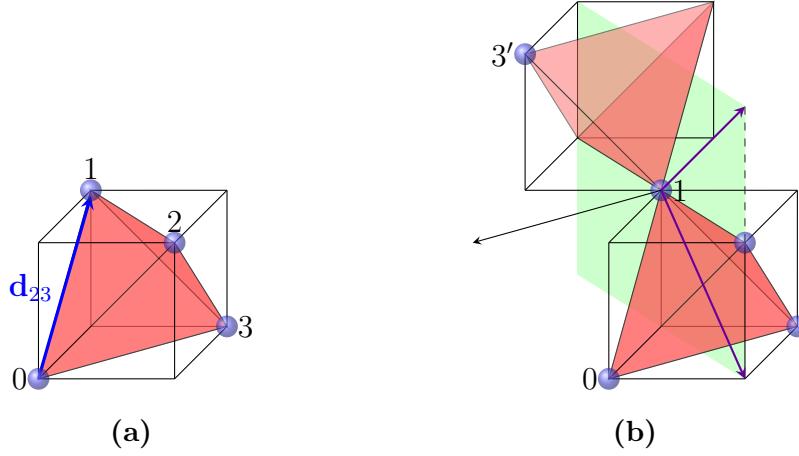


Abbildung 2.1: Vektoren, die im allgemeinsten Hamiltonoperator auftauchen.
 (a) zeigt den Vektor für NN-Hüpfprozesse. In (b) sind die Vektoren $\mathcal{R}_{03'}$ und $\mathcal{D}_{03'}$ (lila) für NNN-Hüpfprozesse zu sehen, diese spannen die Ebene (grün) senkrecht zur Rotationsachse (schwarz) auf, die 0 und 3' vertauscht.

die ohnehin erfüllt sein müssen, um die Hermitizität des Hamiltonoperators zu garantieren. Auch die Bedingungen an die Vektoren \mathbf{v}_{ik} , \mathbf{v}_{jk} , \mathbf{v}_{il} und \mathbf{v}_{jl} sind automatisch erfüllt. Zum Beispiel ergibt sich aus der Spiegelsymmetrie an der Ebene, die die Punkte 2 und 3 enthält, der Zusammenhang zwischen \mathbf{v}_{21} und \mathbf{v}_{24} zu

$$\mathbf{v}_{24} = 2\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{v}_{21}) - \mathbf{v}_{21}. \quad (2.10)$$

Mit Gleichung (2.8) ist Gleichung (2.10) schon erfüllt. Der allgemeinste NN-Hüpfhamiltonoperator für ein Kramersdublett an jedem Iridiumatom lautet also

$$H_0^{\text{NN}} = \sum_{\langle i,j \rangle} c_i^\dagger (t_1 + it_2 \mathbf{d}_{ij} \cdot \boldsymbol{\sigma}) c_j, \quad (2.11)$$

wobei die Vektoren \mathbf{d}_{ij} gemäß

$$\mathbf{b}_{ij} = \mathbf{b}_j - \mathbf{b}_i, \quad (2.12)$$

$$\mathbf{a}_{ij} = \frac{1}{2}(\mathbf{b}_i + \mathbf{b}_j) - \mathbf{x}_c, \quad (2.13)$$

$$\mathbf{d}_{ij} = 2\mathbf{a}_{ij} \times \mathbf{b}_{ij}, \quad (2.14)$$

definiert wurden [56]. \mathbf{b}_{ij} ist der Verbindungsvektor zweier Tetraederpunkte. \mathbf{x}_c ist der Mittelpunkt des Tetraeders, auf dem i und j liegen. Die Vektoren \mathbf{d}_{ij} zeigen dann, wie gefordert, immer entlang der gegenüber liegenden Tetraederkante (Abbildung 2.1(a)).

Der Hamiltonoperator aus Gleichung (2.11) wird ausführlich in [57] und [58] diskutiert. Das Phasendiagramm ist durch einen Parameter t_2/t_1 charakterisiert

und in Abbildung 2.2 dargestellt. Nur zwei verschiedene Phasen existieren, ein topologischer Isolator (TI) und ein Semimetal (SM). In Abbildung 2.3 sind Band-

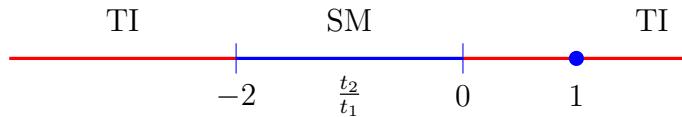


Abbildung 2.2: Phasendiagramm für den allgemeisten NN-Hüpf-Hamiltonoperator auf dem Pyrochloorgitter.

strukturen für verschiedene Parameter dargestellt. Der Phasenübergang zwischen TI und SM wird jeweils durch Schließen oder Öffnen einer Bandlücke bei Γ gesteuert. Die Bandstruktur ist bei den beiden Übergängen gerade invertiert, für $t_2/t_1 = 0$ sind die unteren Bänder also flach und dispersionslos, gerade umgekehrt zu der abgebildeten Struktur für $t_2/t_1 = -2$. Bei $t_2/t_1 = 1$ kommt es zu einem zufälligen Schließen der Bandlücke an mehreren Punkten in der Brillouin-Zone. Für beliebige Werte $t_2/t_1 > 1$ findet man wieder einen topologischen Isolator. Beide Phasen werden in Kapitel 3 ausführlich diskutiert.

In unserem Modell sollen zusätzlich noch Hüpfprozesse zwischen übernächsten Nachbarn berücksichtigt werden. Auch hier finden wir für den Vektor \mathbf{v}_{ij} Einschränkungen. Die relevante Symmetrietransformation ist die Rotation um π um die Achse, die die übernächsten Nachbarn austauscht, so wie in 2.1(b) zu sehen. Ausgangspunkt ist wieder Gleichung (2.5), in der i und j jetzt übernächste Nachbarn sind. Erzeuger und Vernichter werden wieder transformiert und das Ergebnis auf die Form

$$(c_{j\uparrow}^\dagger, c_{j,\downarrow}^\dagger)\tilde{h}_{ij} \begin{pmatrix} c_{i\uparrow} \\ c_{i\downarrow} \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

gebracht, um die Matrix \tilde{h}_{ij} mit der erlaubten Form aus (2.4) vergleichen zu können. Die drei resultierenden Gleichungen können wieder kompakt als

$$\mathbf{v}_{ij} = 2\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{v}_{ji}) - \mathbf{v}_{ji}. \quad (2.16)$$

geschrieben werden. Man beachte, dass dieser Ausdruck die selbe Struktur wie Gleichung (2.10) hat, weil die betrachtete Rotation die gleiche ist, die im Falle nächster Nachbarn als Teil der Spiegelung ausgeführt wurde. Wegen der Hermitizität des Hamiltonoperators ist diese Gleichung erfüllt, wenn der vordere Teil der rechten Seite verschwindet. Also muss \mathbf{v}_{ij} für Hüpfprozesse zwischen übernächsten Nachbarn senkrecht zur Rotationsachse sein, die i und j vertauscht. Damit existieren zwei freie Parameter für NNN-Prozesse. Die Vektoren \mathbf{v}_{ij} können erneut

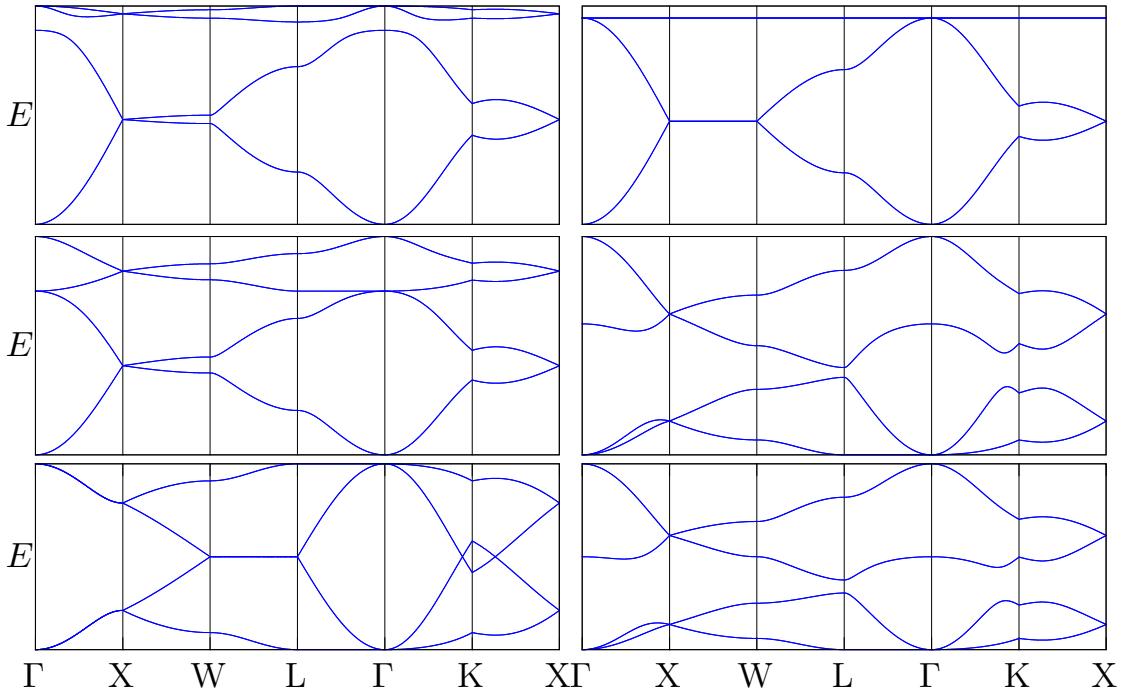


Abbildung 2.3: Bandstruktur für verschiedene Parameter t_2/t_1 . Diese sind (zeilenweise von oben nach unten): -3 (TI), -2 , -1 (SM), 0.5 (TI), 1 (SM) und 4 (TI).

durch Vektoren des Tetraeders ausgedrückt werden. Eine mögliche Wahl ist

$$\mathcal{R}_{ij} = \mathbf{b}_{ik} \times \mathbf{b}_{kj}, \quad (2.17)$$

$$\mathcal{D}_{ij} = \mathbf{d}_{ik} \times \mathbf{d}_{kj}. \quad (2.18)$$

k ist der gemeinsame nächste Nachbar von i und j . Abbildung 2.1(b) verdeutlicht die Konstruktion der Vektoren. Der allgemeinste zeitumkehrinvariante Tight-Binding-Hamiltonoperator mit NN- und NNN-Hüpfprozessen für ein Kramersdublett, den die Symmetrie des Pyrochlordgitters erlaubt, lautet damit

$$H_0 = \sum_{\langle i,j \rangle} c_i^\dagger (t_1 + it_2 \mathbf{d}_{ij} \cdot \boldsymbol{\sigma}) c_j + \sum_{\langle\langle i,j \rangle\rangle} c_i^\dagger (t'_1 + i [t'_2 \mathcal{R}_{ij} + t'_3 \mathcal{D}_{ij}] \cdot \boldsymbol{\sigma}) c_j. \quad (2.19)$$

Es sei noch bemerkt, dass die zur Herleitung von (2.19) genutzten Symmetrieeoperationen nicht die einzigen des Pyrochlordgitters sind. Alle Symmetrieeoperationen werden in [58] diskutiert. Allerdings ergeben sich bei Berücksichtigung der restlichen Symmetrien keine weiteren Einschränkungen an die allgemeinste Form des Hamiltonoperators.

Zur Illustration betrachten wir die Drehung $\mathcal{C}_i^n u(\mathbf{n}_i, 2\pi n/3)$, also die Drehung um den Winkel $2n\pi/3$ um die Achse durch das Tetraederzentrum und den Eckpunkt i im Ortsraum kombiniert mit der gleichen Drehung im Spinraum. Für

$i = 0$ ergibt die Forderung nach Invarianz des Hamiltonoperators etwa, dass die Vektoren \mathbf{v}_{i1} , \mathbf{v}_{i2} und \mathbf{v}_{i3} durch Drehungen um den Winkel $2\pi/3$ verknüpft sind. Gleiches gilt für die Vektoren \mathbf{v}_{12} , \mathbf{v}_{23} und \mathbf{v}_{31} . Das entspricht der erwarteten Konsequenz dieser Symmetrie und ist durch die Konstruktion der Vektoren schon garantiert. Ähnliche Argumente gelten für alle Symmetrioperationen.

2.1.2 Der mikroskopische Hamiltonoperator

Die Diskussion der Elektronenkonfiguration des Iridiums legt nahe, als alternativen Ausgangspunkt aller weiterer Diskussion einen mikroskopischen Hamiltonoperator der Form

$$H = \sum_{i,j,\sigma\sigma'} d_{i,\sigma}^\dagger (T_{O,\sigma\sigma'}^{ij} + T_{d,\sigma\sigma'}^{ij}) d_{j,\sigma'} \quad (2.20)$$

zu verwenden. $d_{i,\sigma}^\dagger$ erzeugt dabei ein Elektron am Ort (Bravais-Gitterpunkt und Basis) i im Zustand σ (d -Orbital und Spinkonfiguration). Die Matrizen T_O und T_d erhalten die Informationen über die mikroskopischen Hüpfprozesse. Jedes Sauerstoffatom gehört zur Umgebung zweier verschiedener Iridiumatome (Abbildung 1.2(c)). T_O beschreibt Hüpfprozesse zwischen Iridiumatomen über diesen gemeinsamen Liganden. T_d beschreibt die direkten Hüpfprozesse zwischen nächsten und übernächsten Nachbarn, die zum Beispiel über die σ -, π - oder δ -Molekülbindungen erfolgen können. Eine solche mikroskopische Formulierung erleichtert die Wahl sinnvoller Werte für die Hüpfparameter. Kenntnis des Zusammenhangs zwischen den Gleichungen (2.19) und (2.20) wäre also wünschenswert.

Wir leiten den Zusammenhang zwischen beiden Formulierungen her. Teile der Herleitung finden sich in [3]. Zunächst werden Hüpfprozessen über die Sauerstoffatome betrachtet. Die Positionen der Atome sind wie in Tabelle 1.1 gewählt. Mit Hilfe der Slater-Koster-Tabellen [59] kann man die Hüpfmatrizen zwischen den t_{2g} -Zuständen der Iridiumatomen und den Sauerstoffatomen konstruieren. Zum Beispiel beschreibt

$$\tau_x^\pm = \pm V_{pd\pi} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.21)$$

die Hüpfprozesse zwischen den (in dieser Reihenfolge) Orbitalen d_{yz} , d_{zx} , d_{xy} des Ir-Atoms und den Orbitalen p_x , p_y und p_z des Sauerstoffatoms, das in positiver (+) und negativer (-) x -Richtung liegt. Der Vorzeichenwechsel ergibt sich aus der ungeraden Parität der p -Orbitale. Die lokalen Koordinatenachsen an jedem Ort eines Iridiumatoms werden durch die Oktaederumgebung definiert. Die Orbitale p_x , p_y und p_z sind dann bezüglich der Koordinatenachsen des beim Hüpfprozess beteiligten Ir-Atoms formuliert. Wir betrachten den zweiten Teil des Hüpfprozesses von

O weiter nach Ir. Weil die Hüpfmatrizen jetzt in der lokalen Basis des neuen Iridiumatoms formuliert sind, können nicht die bisher betrachteten p -Orbitalen verwendet werden. Um mit Störungstheorie Ausdrücke für das Sauerstoff-vermittelte Hüpfen zu finden, muss der Überlapp zwischen den p -Orbitalen des Sauerstoffs in den verschiedenen Koordinatensystemen berücksichtigt werden. Dazu werden die p -Orbitale aus der Basis des ursprünglichen Ir-Atoms in die globale Basis und anschließend in die lokale Basis des Zielatoms rotiert. Die Hüpfmatrix zwischen den *lokalen* d -Orbitalen an den Iridumatomen i und i' lautet dann

$$t^{ii'} = t\tau_{ii'}(R^i)^T R^{i'} \tau_{i'i}, \quad (2.22)$$

wobei sich die Größe $t \propto V_{pd\pi}/\Delta$ mittels Störungstheorie ergibt. Δ ist die Energiedifferenz zwischen den d -Zuständen an den Iridumatomen und den p -Zuständen des Sauerstoffs. Die Matrizen $\tau_{ii'}$ sind aus den Matrizen $\tau_{x,y,z}^\pm$ richtig auszuwählen. Die Zuordnung ist durch i und i' eindeutig festgelegt, Details finden sich im Anhang A.1. Der bei den Hüpfprozessen erhaltene Spin hat bisher keine Rolle gespielt. Bevor in die Basis der SOC-Eigenzustände gewechselt werden kann, müssen Spinrotationen in die lokalen Achsen durchgeführt werden. Die beteiligten Matrizen sind SU(2)-Darstellungen der Rotationen R (siehe Anhang A.1). Dann können die Hüpfmatrixelemente zwischen *lokalen* t_{2g} -Orbitalen l und l' an den Orten i und i' mit den Spins σ und σ' , die bezüglich der *lokalen* Achsen gemessen werden, angegeben werden:

$$\tilde{t}_{l\sigma l'\sigma'}^{ii'} = \left[t^{ii'} \right]_{ll'} \left[(D^{(i)})^\dagger D^{(i')} \right]_{\sigma\sigma'}. \quad (2.23)$$

$D^{(i)}$ ist die 2×2 -Matrix, die den Spin aus der globalen Basis in die lokale Basis am Tetraederpunkt i überführt. Da Spin und Orbital in der gleichen lokalen Basis formuliert sind, geht man zu den SOC-Eigenzuständen über. Dazu werden Erzeuger und Vernichter gemäß der durch Gleichung (1.17) induzierten Vorschrift transformiert. Für die Hüpfmatrizen zwischen lokalen Spin-Orbit-Eigenzuständen ergibt sich der Ausdruck

$$T_{k,k'}^{ii'} = \sum_{ll'\sigma\sigma'} (M_{l\sigma}^k)^* M_{l'\sigma'}^{k'} \tilde{t}_{l\sigma l'\sigma'}^{ii'}, \quad (2.24)$$

mit den Entwicklungskoeffizienten $M_{l\sigma}^k$ der Spin-Orbit-Eigenzustände nach den Zuständen $|d_{xy}, \uparrow\rangle, |d_{xy}, \downarrow\rangle$ usw. k und k' bezeichnen die beiden möglichen Pseudospin-Zustände im $J_{\text{eff}} = 1/2$ Zustand, da das Quadruplett komplett vernachlässigt wird. Bevor der Vergleich mit Gleichung (2.19) möglich ist, wird in einem letzten Schritt an jedem Gitterplatz der lokale SOC-Eigenzustand in die globale Basis

überführt. Es werden wieder die Matrizen $D^{(i)}$ gebraucht.

Wir skizzieren die Prozedur für das direkte Hüpfen zwischen den Iridiumatomen und verweisen für Details erneut auf Anhang A.1. Die Slater-Koster-Tabellen [59] erlauben es, die Matrixelemente für Hüpfprozesse zwischen den in globalen Koordinaten formulierten d -Orbitalen abzulesen. Die in diesen Tabellen stehenden Überlappintegrale werden z.B. mit t_σ für NN-Hüpfprozesse über die σ -Bindung, bezeichnet. Für NNN-Prozesse werden gestrichenen Variablen genutzt, z.B. t'_σ . Am Tetraederpunkt i werden die d -Orbitale in das globale Koordinatensystem überführt und die Hüpfmatrix konstruiert. Anschließend dreht man am Zielort des Hüpfprozesses i' in die lokale Basis zurück und beschreibt dann – wie oben – Hüpfprozesse zwischen lokalen t_{2g} -Orbitalen, nur dass es sich diesmal um direkte Prozesse ohne den Zwischenschritt über die Sauerstoffatome handelt. Das weitere Vorgehen ist identisch, also Basiswechsel zu den Spin-Orbit-Eigenzuständen, Projektion auf das Dublett und Drehung im Pseudospinraum. Die einzelnen Schritte sind für NN-Hüpfprozesse und NNN-Hüpfprozesse gleich, nur die Überlappintegrale in den Slater-Koster-Tabellen sind anders. Damit ist der Hamiltonoperator aus Gleichung (2.20) in derselben Basis formuliert, wie der Hamiltonoperator aus Gleichung (2.19). Die Zusammenhänge zwischen den mikroskopischen und den symmetrieerlaubten Hüpfparametern liest man direkt ab. Es ergibt sich

$$t_1 = \frac{130}{243} t_{\text{oxy}} + \frac{17}{324} t_\sigma - \frac{79}{243} t_\pi, \quad (2.25)$$

$$t_2 = \frac{28}{243} t_{\text{oxy}} + \frac{15}{243} t_\sigma - \frac{40}{243} t_\pi, \quad (2.26)$$

$$t'_1 = \frac{233}{2916} t_{\sigma'} - \frac{407}{2187} t_{\pi'} - \frac{1843}{8748} t_{\delta'}, \quad (2.27)$$

$$t'_2 = \frac{1}{1458} t_{\sigma'} - \frac{220}{2187} t_{\pi'} - \frac{277}{4374} t_{\delta'}, \quad (2.28)$$

$$t'_3 = \frac{25}{1458} t_{\sigma'} - \frac{460}{2187} t_{\pi'} - \frac{275}{4374} t_{\delta'}. \quad (2.29)$$

Die Anzahl der mikroskopische Hüpfparameter und die Anzahl der Freiheitsgrade in Gleichung (2.19) stimmen hier überein. Tatsächlich könnte man auch noch weitere mikroskopische Prozesse berücksichtigen, zum Beispiel NN-Hüpfen über δ -Bindungen oder NNN-Hüpfen über Sauerstoffatome. Die zentrale Aussage ist, dass sich dadurch die tatsächliche Anzahl an Freiheitsgraden nicht ändert, es kommen lediglich neue Summanden in den Gleichungen hinzu. Das bedeutet, dass der mikroskopische Hamiltonoperator (2.20) tatsächlich schon die Form (2.19) hat, unabhängig von der Anzahl mikroskopischer Hüpfprozesse.

2.1.3 Der Hamiltonoperator im Impulsraum

Um die Translationssymmetrie des Festkörpers auszunutzen, wird eine Fourier-Transformation durchgeführt. Die Gleichung

$$c_{\mathbf{R}i\sigma}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i} c_{\mathbf{k}i\sigma}^\dagger \quad (2.30)$$

führt die Operatoren $c_{\mathbf{k}i\sigma}^\dagger$ ein, die auf den vier Untergittern i Fermionen mit Impuls \mathbf{k} und (Pseudo-)Spin σ erzeugen. Im Folgenden meint \mathbf{R} immer den Bravais-Gittervektor und \mathbf{R}_j den Bravais-Gittervektor plus den Vektor \mathbf{b}_j . Möglich wäre es auch, in Gleichung (2.30) \mathbf{R} zu nutzen, die Resultate gehen durch eine unitäre Transformation ineinander über. Die Summationsindizes im NN-Hamiltonoperator schreiben man zunächst ausführlicher als

$$H = \sum_{\mathbf{R}=(klm)} \sum_{j=0}^3 \sum_{\substack{i \\ i \text{ NN von } j}} \sum_{\sigma\sigma'} c_{\mathbf{R}'i\sigma}^\dagger h_{\sigma\sigma'}^{ij} c_{\mathbf{R}j\sigma'} \quad (2.31)$$

und benutzt Gleichung (2.30):

$$H = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{R}ij\sigma\sigma'} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} h_{\sigma\sigma'}^{ij} e^{-i\mathbf{k}'\cdot(k'\mathbf{a}_1 + l'\mathbf{a}_2 + m'\mathbf{a}_3 + \mathbf{b}_i)} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_j} c_{i\mathbf{k}'\sigma}^\dagger c_{j\mathbf{k}\sigma'}. \quad (2.32)$$

Der Summationsindex i beinhaltet bis hierher wiederum den Bravais-Gittervektor und den Basisvektor. In der Summe über i werden die direkten und die indirekten nächsten Nachbarn jetzt separat betrachtet. In beiden Fällen sind die Größen (k', l', m') bekannt. Im ersten Fall sind sie identisch zu (k, l, m) , im zweiten Fall sind sie durch Gleichung (1.21) bestimmt. $h_{\sigma\sigma'}^{ij}$ ist unabhängig davon, ob i und j direkte oder indirekte Nachbarn sind. Weiterhin wird der Spinindex unterdrückt, h^{ij} ist dann eine 2×2 -Matrix und $c_{i\mathbf{k}} = (c_{i\mathbf{k}\uparrow}, c_{i\mathbf{k}\downarrow})$. Es folgt

$$\begin{aligned} H = & \sum_{\mathbf{R}, ijk\mathbf{k}\mathbf{k}'} h^{ij} \left(e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{R}} e^{-i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{b}_i + i\mathbf{k}\cdot\mathbf{b}_j} c_{i\mathbf{k}'}^\dagger c_{j\mathbf{k}} \right. \\ & \left. + e^{-i(\mathbf{k}'-\mathbf{k})\cdot\mathbf{R}} e^{-i\mathbf{k}'\cdot\{(\delta_{1j}-\delta_{1i})\mathbf{a}_1 + (\delta_{2j}-\delta_{2i})\mathbf{a}_2 + (\delta_{3j}-\delta_{3i})\mathbf{a}_3 + \mathbf{b}_i\}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j} c_{i\mathbf{k}'}^\dagger c_{j\mathbf{k}} \right). \end{aligned} \quad (2.33)$$

Der Summationsindex i zählt nur noch die Basispositionen ab, da für jedes i in Gleichung (2.33) zwei Summanden auftauchen, die direkte bzw indirekte Hüpfprozesse beschreiben. Wir benutzen $\sum_{\mathbf{R}} e^{-i(\mathbf{k}'-\mathbf{k})\cdot\mathbf{R}} = N\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$, vereinfachen die δ -Ausdrücke und nennen den verbliebenen Impuls in den Gleichungen \mathbf{q} . Da-

mit vereinfacht sich Gleichung (2.33) zu

$$\begin{aligned}
H &= \sum_{\mathbf{q}} \sum_{ij} h^{ij} c_{i\mathbf{q}}^\dagger c_{j\mathbf{q}} (e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{b}_i - \mathbf{b}_j)} + e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{a}_j - \mathbf{a}_i + \mathbf{b}_i - \mathbf{b}_j)}) \\
&= \sum_{\mathbf{q}} \sum_{ij} h^{ij} c_{i\mathbf{q}}^\dagger c_{j\mathbf{q}} (e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} + e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{b}_j - \mathbf{b}_i)}) \\
&= \sum_{\mathbf{q}} \sum_{ij} 2 \cos(\mathbf{q} \cdot (\mathbf{b}_i - \mathbf{b}_j)) h^{ij} c_{i\mathbf{q}}^\dagger c_{j\mathbf{q}}.
\end{aligned} \tag{2.34}$$

Der Ausgangspunkt für Hüpfprozesse zwischen übernächsten Nachbarn ist

$$H = \sum_{\mathbf{R}=(klm)} \sum_{j=0}^3 \sum_{\substack{i \\ i \text{ NNN von } j}} h_c^{ij} c_{\mathbf{R},i}^\dagger c_{\mathbf{R},j}. \tag{2.35}$$

h_c^{ij} ist das Matrixelement für Hüpfprozesse von j nach i über den gemeinsamen nächsten Nachbarn c . Die Summe über die übernächsten Nachbarn kann als Summe über alle Zwischenpositionen c mit $c \neq j$ und für festes c als zweite Summe über alle i , $i \neq c, j$ geschrieben werden. Für jede dieser Konfigurationen c, i, j gibt es wieder einen indirekten Term und einen direkten Beitrag. Für die Hüpfmatrixelemente spielt es erneut keine Rolle, welche der Punkte i, j, c auf demselben Tetraeder liegen. Mit den Gleichungen (1.23) und (1.24) behandeln wir direktes und indirektes Hüpfen wieder separat und bekommen nach dem Übergang zum reziproken Raum einen Ausdruck ähnlich zu (2.33):

$$\begin{aligned}
H &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{R},j} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \sum_{\substack{c \\ c \neq j}} \sum_{\substack{i \\ i \neq c,j}} h_c^{ij} c_{i\mathbf{k}'}^\dagger c_{j\mathbf{k}} \\
&\quad \times \left(e^{-i\mathbf{k}' \cdot [(k+\delta_{1c}-\delta_{1i})\mathbf{a}_1 + (l+\delta_{2c}-\delta_{2i})\mathbf{a}_2 + (m+\delta_{3c}-\delta_{3i})\mathbf{a}_3 + \mathbf{b}_i]} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} \right. \\
&\quad \left. + e^{-i\mathbf{k}' \cdot [(k+\delta_{1j}-\delta_{1c})\mathbf{a}_1 + (l+\delta_{2j}-\delta_{2c})\mathbf{a}_2 + (m+\delta_{3j}-\delta_{3c})\mathbf{a}_3 + \mathbf{b}_i]} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} \right) \\
&= \sum_{\mathbf{q},ijc} h_c^{ij} c_{i\mathbf{q}}^\dagger c_{j\mathbf{q}} (e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{a}_c - \mathbf{a}_i + \mathbf{b}_i - \mathbf{b}_j)} + e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{a}_j - \mathbf{a}_c + \mathbf{b}_i - \mathbf{b}_j)}) \\
&= \sum_{\mathbf{q}} \sum_{ijc} 2 \cos(\mathbf{q} \cdot [(\mathbf{b}_c - \mathbf{b}_i) - (\mathbf{b}_j - \mathbf{b}_c)]) h_c^{ij} c_{i\mathbf{q}}^\dagger c_{j\mathbf{q}},
\end{aligned} \tag{2.36}$$

wobei im ersten Schritt die δ -Ausdrücke ausgewertet wurden und für die Summation über i, j und c immer die Einschränkung aus der ersten Zeile gilt. Nach Einsetzen der konkreten Ausdrücke für die h^{ij} und h_c^{ij} erhält man für den Hamiltonoperator im Impulsraum

$$H = \sum_{\mathbf{q}} c_{i\mathbf{q}}^\dagger [\mathcal{H}_{ij}^{\text{NN}}(\mathbf{q}) + \mathcal{H}_{ij}^{\text{NNN}}(\mathbf{q})] c_{j\mathbf{q}} \tag{2.37}$$

mit den acht-komponentigen Vektoren $c_{i\mathbf{q}}^\dagger = (c_{1\uparrow}^\dagger, c_{1\downarrow}^\dagger \dots)$ und den 8×8 -Matrizen

$$\mathcal{H}_{ij}^{\text{NN}}(\mathbf{q}) = 2(t_1 + t_2 i\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{d}_{ij}) \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{b}_{ij}) \quad (2.38)$$

und

$$\mathcal{H}_{ij}^{\text{NNN}}(\mathbf{q}) = 2 \sum_{c \neq i,j} \{t'_1(1-\delta_{ij}) + i\boldsymbol{\sigma} \cdot [t'_2(\mathbf{b}_{ic} \times \mathbf{b}_{cj}) + t'_3(\mathbf{d}_{ic} \times \mathbf{d}_{cj})]\} \cos(\mathbf{q} \cdot (\mathbf{b}_{cj} - \mathbf{b}_{ic})) \quad (2.39)$$

Man beachte, dass die Einschränkung $i \neq j$ in der Summe weggefallen ist. Sie steckt in dem zusätzlichen δ_{ij} und den für $i = j$ verschwindenden Kreuzprodukten. Referenz [56] gibt das gleiche Ergebnis an.

2.2 Wechselwirkende Elektronen auf dem Pyrochlordgitter

Elektronenkorrelationen sind bisher vernachlässigt worden. Sie werden jetzt durch die Hubbard-Abstoßung eingeführt:

$$H_I = \sum_{\mathbf{R},i} U n_{\mathbf{R}i\uparrow} n_{\mathbf{R}i\downarrow} = \sum_{\mathbf{R},i} U c_{\mathbf{R}i\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\uparrow} c_{\mathbf{R}i\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\downarrow}. \quad (2.40)$$

Energetisch ist es für die Fermionen auf Grund der starken Coulomb-Abstoßung also ungünstig auf demselben Gitterplatz zu sitzen. Die Summe läuft über alle Bravais-Gitterpunkte \mathbf{R} und an jedem Bravais-Gitterpunkt über alle vier Untergitter. Der vollständige Hamiltonoperator lautet

$$H = H_0 + H_I. \quad (2.41)$$

Trotz der einfachen Gestalt von Gleichung (2.40) werden Näherungen gebraucht, um Gleichung (2.41) lösen zu können. Hier wird H_I im Rahmen einer Mean-Field-Theorie behandelt. Nach dem Schema

$$\hat{A}\hat{B} \approx \langle \hat{A} \rangle \hat{B} + \hat{A} \langle \hat{B} \rangle - \langle \hat{A} \rangle \langle \hat{B} \rangle \quad (2.42)$$

mit den bilinearen Operatoren \hat{A} und \hat{B} , wird die Wechselwirkung durch einen effektiven Potential-Term ersetzt, der ebenfalls bilinear in Erzeugern und Vernichtern ist. Dabei vernachlässigen wir die Terme, die quadratisch in den Fluktuationen $\delta\hat{A} = \hat{A} - \langle \hat{A} \rangle$ sind. Die Sinnhaftigkeit dieser Annahme lässt sich im Rahmen der Mean-Field-Theorie selbst nicht überprüfen. Gleichung (2.40) wird

nach der Hartree-Fock-Näherung entkoppelt. Man erhält

$$\begin{aligned}
H_I &\approx \sum_{\mathbf{R}, i} U \left(\langle c_{\mathbf{R}i\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\uparrow} \rangle c_{\mathbf{R}i\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\downarrow} + c_{\mathbf{R}i\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\uparrow} \langle c_{\mathbf{R}i\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\downarrow} \rangle - \langle c_{\mathbf{R}i\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\uparrow} \rangle \langle c_{\mathbf{R}i\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\downarrow} \rangle \right. \\
&\quad \left. - \langle c_{\mathbf{R}i\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\downarrow} \rangle c_{\mathbf{R}i\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\uparrow} - c_{\mathbf{R}i\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\downarrow} \langle c_{\mathbf{R}i\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\uparrow} \rangle + \langle c_{\mathbf{R}i\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\downarrow} \rangle \langle c_{\mathbf{R}i\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{R}i\uparrow} \rangle \right) \\
&= H_I^{\text{mf}}.
\end{aligned} \tag{2.43}$$

Was sagen die Mean-Field-Parameter $\langle c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma'} \rangle$ über die Eigenschaften des Systems aus? Es ist zum Beispiel $\langle c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \rangle = \langle n_{i\sigma} \rangle$ die Besetzungszahl des Pseudospin-Zustandes $|J_{\text{eff}} = 1/2, \sigma\rangle$ am Ort i . Die Mean-Field-Parameter hängen mit dem Erwartungswert des Pseudospin-Vektors $\mathbf{J}_{\mathbf{R}i}^{\text{eff}}$ über

$$\mathbf{J}_{\mathbf{R}i}^k = \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta} c_{\mathbf{R}i\alpha}^\dagger \sigma_{\alpha\beta}^k c_{\mathbf{R}i\beta}. \tag{2.44}$$

zusammen. Das entspricht den trivialen Zusammenhängen $S_z = (n_\uparrow - n_\downarrow)/2$ sowie $S_+ = c_\uparrow^\dagger c_\downarrow$ und $S_- = c_\downarrow^\dagger c_\uparrow$. Damit sind drei der vier Erwartungswerte pro Gitterplatz festgelegt. Wenn man die realen Spin- und Drehimpulsoperatoren auf die $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Untermannigfaltigkeit projiziert, sind beide Operatoren proportional zum Pseudospin-Operator. Das sieht man durch Anwendungen von \mathbf{L} und \mathbf{S} auf die J_{eff} -Zustände aus Gleichung (1.17). Die Erwartungswerte $\langle \mathbf{J}_{\text{eff}} \rangle$ können als die lokalen magnetischen Momente verstanden werden. Die Mean-Field-Parameter bestimmen die magnetische Ordnung auf dem Pyrochloorgitter. Sie haben die Eigenschaften von Ordnungsparametern im Sinne der Landau-Theorie. In Zukunft schreiben wir für den Erwartungswert des magnetischen Moments am Untergitter i \mathbf{S}_i .

Wie viele solcher Parameter gibt es in dem betrachteten System? Es gehört zur Philosophie der Mean-Field-Theorie, dass man nur findet, wonach man explizit sucht. Werden Ladungsdichtewellen ausgeschlossen, dann ist die Größe $\langle n_{i\uparrow} \rangle + \langle n_{i\downarrow} \rangle$ durch die von außen vorgegebene Elektronendichte festgelegt und es verbleiben – sofern die magnetische Ordnung auch die Einheitszelle erhält – zwölf Mean-Field-Parameter. Bei Betrachtung von ungleichmäßig verteilten Besetzungszahlen innerhalb eines Tetraeders gibt es 15 Parameter. Wenn Ladungsdichtewellen betrachtet werden, erhöht sich die Anzahl der Mean-Field-Parameter um entsprechende Faktoren. Die Vorgabe bestimmter magnetischer Ordnungen reduziert die Mean-Field-Parameter.

Für den Fall, dass die Translationssymmetrie durch die Hubbard-Wechselwirkung nicht gebrochen wird, können die Operatoren aus Gleichung (2.30) genutzt werden. Die Fourier-Transformation hätte auch in Gleichung (2.40) durchgeführt und

anschließend die Mean-Field-Näherung angewendet werden können. Die Translationssymmetrie versteckt sich dann in der Erhaltung des Gitterimpulses $\langle c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}'\sigma'} \rangle \sim \delta_{\mathbf{kk'}}$. Für jedes einzelne Untergitter ergibt sich der Term

$$\begin{aligned}
U \sum_{\mathbf{R}} n_{\mathbf{R}\uparrow} n_{\mathbf{R}\downarrow} &\approx U \sum_R \left[\sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \frac{1}{N} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}') \cdot \mathbf{R}} \left(\langle n_\uparrow \rangle c_{\mathbf{k}\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{k}'\downarrow} + \langle n_\downarrow \rangle c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{k}'\uparrow} \right) + \langle n_\uparrow \rangle \langle n_\downarrow \rangle \right] \\
&\quad + U \sum_R \left[\sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \frac{1}{N} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}') \cdot \mathbf{R}} \left(-\langle c_\uparrow^\dagger c_\downarrow \rangle c_{\mathbf{k}\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{k}'\uparrow} - \langle c_\downarrow^\dagger c_\uparrow \rangle c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{k}'\downarrow} \right) + \langle c_\downarrow^\dagger c_\uparrow \rangle \langle c_\uparrow^\dagger c_\downarrow \rangle \right] \\
&= U \sum_{\mathbf{k}} (\langle n_\uparrow \rangle n_{\mathbf{k}\downarrow} + \langle n_\downarrow \rangle n_{\mathbf{k}\uparrow}) - UN \langle n_\uparrow \rangle \langle n_\downarrow \rangle + UN \langle c_\downarrow^\dagger c_\uparrow \rangle \langle c_\uparrow^\dagger c_\downarrow \rangle \\
&\quad + U \sum_{\mathbf{k}} \left(-\langle c_\uparrow^\dagger c_\downarrow \rangle c_{\mathbf{k}\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{k}\uparrow} - \langle c_\downarrow^\dagger c_\uparrow \rangle c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{k}\downarrow} \right)
\end{aligned} \tag{2.45}$$

Auf Grund der Translationssymmetrie wurde der Index \mathbf{R} an allen Erwartungswerten weggelassen. Der endgültige Hamiltonoperator lautet

$$H_{MF} = \sum_{\mathbf{k}} c_{i\mathbf{k}}^\dagger \mathcal{H}_{ij}(\mathbf{k}) c_{i\mathbf{k}}, \tag{2.46}$$

mit der Bloch-Matrix

$$\mathcal{H}(\mathbf{k}) = \mathcal{H}^{\text{NN}}(\mathbf{k}) + \mathcal{H}^{\text{NNN}}(\mathbf{k}) + \mathcal{H}_I, \tag{2.47}$$

deren Diagonalisierung die Bandstruktur liefert. \mathcal{H}_I kann noch durch die Erwartungswerte der magnetischen Momente ausgedrückt werden. Es folgt

$$\mathcal{H}_I = U \begin{pmatrix} \mathcal{H}_I^0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \mathcal{H}_I^1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \mathcal{H}_I^2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \mathcal{H}_I^3 \end{pmatrix} \tag{2.48}$$

mit

$$\mathcal{H}_I^i = \begin{pmatrix} S_i^0 - S_i^z & -S_i^x + iS_i^y \\ -S_i^x - iS_i^y & S_i^0 + S_i^z \end{pmatrix}. \tag{2.49}$$

Dabei wurde $S^0 = (\langle n_\uparrow \rangle + \langle n_\downarrow \rangle)/2$ definiert. Ohne Ladungsdichtewellen gilt $S^0 = 1/2$. Wir fassen die konstanten Terme, die Hartree-Fock-Verschiebung, in Gleichung (2.45) noch zusammen:

$$E_{\text{HF}} = \sum_i \left(UN \langle c_{i\downarrow}^\dagger c_{i\uparrow} \rangle \langle c_{i\uparrow}^\dagger c_{i\downarrow} \rangle - UN \langle n_{i\uparrow} \rangle \langle n_{i\downarrow} \rangle \right). \tag{2.50}$$

Die Summe geht über die Untergitter. Für die Bandstruktur ist diese konstante

Verschiebung unwichtig.

2.3 Selbstkonsistenz und freie Energie

Der Hamiltonoperator H_{mf} enthält jetzt alle relevanten Wechselwirkungen (Hüpfprozesse, SOC, Coulomb-Abstoßung) und ist durch die Mean-Field-Näherung bilinear in Erzeugern und Vernichtern. Das Problem ist durch Diagonalisieren einer 8×8 -Matrix gelöst. Allerdings enthält der Hamiltonoperator die noch unbekannten Größen \mathbf{S}_i , bzw. $\langle c_\sigma^\dagger c_{\sigma'} \rangle$. Diese Erwartungswerte lassen sich mit H_{mf} berechnen. Das Ergebnis sollte mit den in H_{mf} eingesetzten Parametern übereinstimmen. Die Ordnungsparameter müssen also eine Selbstkonsistenz-Bedingung erfüllen:

$$\langle c_\sigma^\dagger c_{\sigma'} \rangle = \frac{\text{Tr } c_\sigma^\dagger c_{\sigma'} e^{-\beta H_{\text{mf}}}}{\text{Tr } e^{-\beta H_{\text{mf}}}}. \quad (2.51)$$

Für diese Gleichung gibt es zwei Lösungsmöglichkeiten. Sie ist immer erfüllt, wenn die freie Energie eine lokale Extremstelle aufweist. Wir können also die freie Energie als Funktion der Mean-Field-Parameter minimieren. Alternativ ließe sich Gleichung (2.51) direkt ausnutzen [60]. Dazu schreibt man den Ausdruck zunächst um:

$$\langle c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma'} \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{i\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{i\mathbf{k}\sigma'} \rangle = \frac{V}{(2\pi)^3 N} \int_{1. \text{ BZ}} d^3 k \langle c_{i\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{i\mathbf{k}\sigma'} \rangle. \quad (2.52)$$

i zählt die Untergitter ab. Der Index \mathbf{R} auf der linken Seite wurde wieder weggelassen. Für $N \rightarrow \infty$ bilden die zulässigen \mathbf{k} ein Kontinuum. Anstelle der Summe tritt damit das Integral über die erste Brillouin-Zone oder ein äquivalentes Volumen. Die rechts auftretenden Erwartungswerte werden berechnet. Die Spur aus Gleichung (2.51) ergibt sich am einfachsten in der Basis der Energieeigenzustände. Wir schreiben deshalb

$$c_{i\mathbf{k}\sigma}^\dagger = \sum_n A_{i\sigma}^n(\mathbf{k}) a_{\mathbf{k}n}^\dagger \quad (2.53)$$

mit dem Operator $a_{\mathbf{k}n}^\dagger$, der ein Fermion im n -ten Band mit Impuls \mathbf{k} erzeugt. $A_{i\sigma}^n(\mathbf{k})$ ist die unitäre 8×8 -Matrix, die die Bloch-Matrix $\mathcal{H}(\mathbf{k})$ diagonalisiert. Die Komponenten des n -ten Eigenvektors der Bloch-Matrix sind also gerade durch $(A_{i\sigma}^n)^*$ gegeben, mit $(i, \sigma) = 1, \dots, 8$. Es ergibt sich

$$\langle c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma'} \rangle = \frac{V}{(2\pi)^3 N} \int_{1. \text{ BZ}} d^3 k \sum_{n,n'} (A_{i\sigma}^n)^* A_{i\sigma'}^{n'} \langle a_{\mathbf{k}n}^\dagger a_{\mathbf{k}n'} \rangle. \quad (2.54)$$

Die Erwartungswerte auf der rechten Seite können leicht nach Gleichung (2.51) berechnet werden:

$$\langle a_{\mathbf{k}n}^\dagger a_{\mathbf{k}n'} \rangle = \frac{1}{\exp[\beta(\epsilon_n(\mathbf{k}) - \mu)] + 1} \delta_{nn'} = n_F(\epsilon_n(\mathbf{k}) - \mu) \delta_{nn'}, \quad (2.55)$$

n_F ist die Fermi-Funktion, $\epsilon_n(\mathbf{k})$ der n -te Energieeigenwert der Bloch-Matrix $\mathcal{H}(\mathbf{k})$ und μ das chemische Potential. Gleichung (2.51) geht dann über in

$$\langle c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma'} \rangle = \frac{V}{(2\pi)^3 N} \int_{1. \text{ BZ}} d^3 k \sum_n (A_{i\sigma}^n)^* A_{i\sigma'}^n n_F(\epsilon_n(\mathbf{k}) - \mu). \quad (2.56)$$

Gleichung (2.56) erlaubt die iterative numerische Bestimmung der Ordnungsparameter. Zunächst werden geeignete Startwerte gewählt. Dabei gibt es Einschränkungen, zum Beispiel sollte für physikalisch sinnvolle Konfigurationen stets $1 > S^0 > S^z$ gelten. Die Mean-Field-Parameter werden jedoch als physikalische Erwartungswerte von verallgemeinerten Teilchenzahloperatoren bestimmt und nehmen deshalb spätestens nach dem ersten Iterationsschritt Werte an, die mit allen physikalischen Einschränkungen verträglich sind. Deshalb werden alle Startwerte zufällig gewählt, die Komponenten des Spins aus dem Intervall $[-1/2, 1/2]$ und (falls mehr als zwölf Mean-Field-Parameter berechnet werden) $S^0 \in [0, 1]$. Die Teilchendichte wird über das chemische Potential kontrolliert. Für gegebenes ρ_{el} wird dazu die implizite Gleichung

$$\frac{1}{(2\pi)^3} \int_{1. \text{ BZ}} d^3 k n_F(\epsilon_n(\mathbf{k}) - \mu) = \rho_{el} \quad (2.57)$$

für μ gelöst. Aus Gleichung (2.56) wird ein neuer Satz Mean-Field-Parameter berechnet. Für die korrekte Parameterwahl dürften sich diese Erwartungswerte nicht ändern. Für die zufälligen Startwerte trifft das natürlich nicht zu. Die Prozedur wird mit den neuen Parametern als Startwerte wiederholt, in der Hoffnung, dass die Mean-Field-Parameter nach einer hinreichend großen Anzahl an Iterationen gegen die selbstkonsistente Lösung konvergieren. Praktisch wählt man eine Maximaldifferenz δ_a und berechnet die Änderung der Mean-Field-Parameter in jedem Iterationsschritt. Wenn für alle Ordnungsparameter gilt $|S_i^\alpha(n) - S_i^\alpha(n+1)| < \delta_a$ stoppt der Iterationsalgorithmus. In Abbildung 2.4 wird dieses Verfahren schematisch zusammengefasst. In Abhängigkeit von den Startwerten kann die Iteration auf verschiedene Fixpunkte im Ordnungsparameterraum zulaufen. Wenn mehr als eine Lösung gefunden wird, werden die zugehörigen freien Energie F_{mf} berechnet und diejenige Konfiguration mit dem niedrigsten Wert als physikalisch richtige Lösung ausgewählt. Für diese iterative Bestimmung wurde E_{HF} vernachlässigt.

Bei der Berechnung des chemischen Potentials wird diese Verschiebung kompensiert.

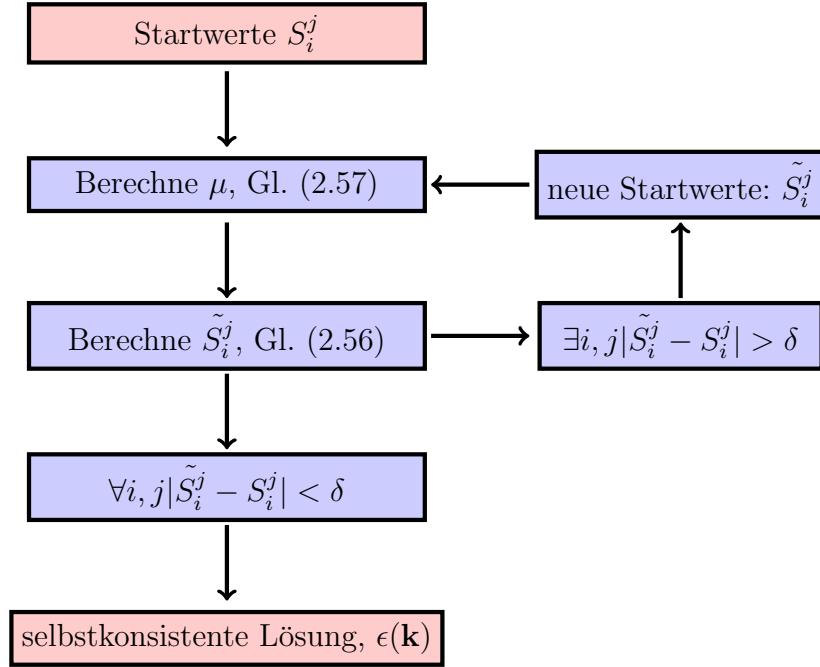


Abbildung 2.4: Schema der Lösung von Gleichung (2.56).

Die Mean-Field-Näherung ersetzt die wechselwirkenden Teilchen durch wechselwirkungsfreie Teilchen in einem effektiven Potential, so dass die freie Energie bekannt ist:

$$F = \langle H \rangle - TS = \frac{V}{(2\pi)^3} \int_{1.\text{BZ}} d^3k \sum_n n_F(\epsilon_n(\mathbf{k}) - \mu) \epsilon_n(\mathbf{k}) + E_{\text{HF}} - TS. \quad (2.58)$$

Man beachte, dass der konstante Term aus der Hartree-Fock-Entkopplung bei der Berechnung der freien Energie berücksichtigt werden muss, da er bestimmte magnetische Konfigurationen energetisch favorisiert. Ausgedrückt durch die Erwartungswerte \mathbf{S}^i und S^0 ergibt er sich zu

$$E_{\text{HF}} = UN \sum_i (|\mathbf{S}_i|^2 - (S_i^0)^2). \quad (2.59)$$

Für wechselwirkungsfreie Fermionen lautet die Entropie

$$\begin{aligned} S = - k_B \sum_n \frac{V}{(2\pi)^3} \int_{1.\text{BZ}} d^3k & [n_F(\epsilon_n(\mathbf{k}) - \mu) \ln n_F(\epsilon_n(\mathbf{k}) - \mu) \\ & + (1 - n_F(\epsilon_n(\mathbf{k}) - \mu)) \ln (1 - n_F(\epsilon_n(\mathbf{k}) - \mu))]. \end{aligned} \quad (2.60)$$

Gleichung (2.58) gibt die freie Energie als Funktion der Ordnungsparameter. Die Abhängigkeit steckt in den Energien und im chemischen Potential. Glei-

chung (2.58) kann genutzt werden, um verschiedene selbstkonsistente Lösungen zu vergleichen, der Ausdruck kann aber auch direkt auf lokale Extremstellen untersucht werden. In Anhang A.2 wird auf die Vorzüge beider Methoden hingewiesen. Außerdem werden dort Details der Implementierung diskutiert. In der Praxis arbeiten wir nicht mit Gleichung (2.58), sondern teilen diese noch durch das Volumen, um extensive Größen zu eliminieren. Im Limes $V, N \rightarrow \infty$ divergieren sonst alle Summanden. In E_{HF} geht dann die Bravais-Gitterpunktsdichte ein. Interessiert sind wir am Grundzustandsphasendiagramm des Hamiltonoperators für $T = 0$. Die Temperatur wird hier in erster Linie nur genutzt, um die Konvergenz der berechneten Integrale durch das Glätten der Fermi-Funktion zu verbessern. Ob das Mitführen endlicher Temperaturen tatsächlich angebracht ist, kann überprüft werden, indem Minimierung oder Iteration für verschiedene Temperaturen durchgeführt werden. Ist die Differenz der Ergebnisse nur marginal, wird davon ausgegangen, dass auch die Berechnung mit höheren Temperaturen die Grundzustandseigenschaften korrekt findet.

2.4 Bemerkungen zum Phasendiagramm

Das folgende Kapitel präsentiert das Phasendiagramm für magnetische Ordnung auf dem Pyrochlordgitter. Die Parameter sind die Coulomb-Abstoßung und die Hüpfparameter. Das wirkt auf den ersten Blick befremdlich, sind diese beiden Größen doch experimentell nicht kontinuierlich durchfahrbar. Wie können trotzdem verschiedene Punkte im Phasendiagramm erreicht werden? Hinweise geben die verschiedenen Grundzustandseigenschaften der Pyrochloriridate in Abhängigkeit vom R -Ion. Je nach Radius des R^{3+} findet man metallische Grundzustände oder Isolatoren mit magnetischer Ordnung. Verschiedene Substituenten für R können sowohl die Coulomb-Wechselwirkung, als auch die Hüpfparameter ändern. Auch findet man Übergänge von metallischen zu isolierenden Grundzuständen bei hohem Druck. Ausführlich wird dies zum Beispiel in [61] und [1] diskutiert.

3 Resultate

3.1 Das Mean-Field-Phasendiagramm

Im Folgenden wird das Phasendiagramm für magnetische Ordnung auf dem Pyrochlordgitter berechnet. Zunächst werden zwölf verschiedene Mean-Field-Parameter betrachtet und die mittlere Elektronenanzahl pro Tetraedereckpunkt fixiert. Die Hüpfparameter werden wie in Referenz [56] gewählt, um durch Vergleich der Ergebnisse die Implementierung kontrollieren zu können:

$$t_{\text{oxy}} = 1, \quad (3.1)$$

$$t_\pi = -\frac{2}{3}t_\sigma, \quad (3.2)$$

$$t_\delta = 0, \quad (3.3)$$

$$t'_\pi = 0.08t_\pi, \quad (3.4)$$

$$t'_\sigma = 0.08t_\sigma, \quad (3.5)$$

$$t'_\delta = 0. \quad (3.6)$$

t_{oxy} definiert die Energieeinheit. Alle nachfolgend angegebenen Energie beziehen sich auf diese Größe. Die Hüpfparameter sind als Funktion von t_σ gegeben. Zusammen mit der Wechselwirkung U verbleiben zwei freie Parameter. Das Problem der Bestimmung der Mean-Field-Parameter wird durch Minimierung der freien Energie und durch iterative Berechnung der Parameter an jedem Punkt des Phasendiagramms gelöst. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Zwei Hauptbereiche können in diesem Diagramm unterschieden werden: Die gelb unterlegten Phasen zeigen keine magnetische Ordnung. Nicht-verschwindende Erwartungswerte der magnetischen Momente brechen in den blau markierte Phasen spontan die Zeitumkehrsymmetrie. Die einzelnen Phasen sind Metall (M), Semimetall (SM), topologischer Isolator (TI), Metall mit antiferromagnetischer

Ordnung (mAI), topologisches Weyl-Semimetal (TWS) und Isolatoren mit zwei unterschiedlichen antiferromagnetischen Ordnungen (AIAO und rAI). Das Phasendiagramm ist zu dem in Referenz [56] gefundenen identisch. Ein qualitativ gleiches Diagramm findet sich in [11], teilweise Übereinstimmung besteht mit [61], wo nur Hüpfprozesse zwischen nächsten Nachbarn bei der Bestimmung der Mean-Field-Parameter berücksichtigt wurden.

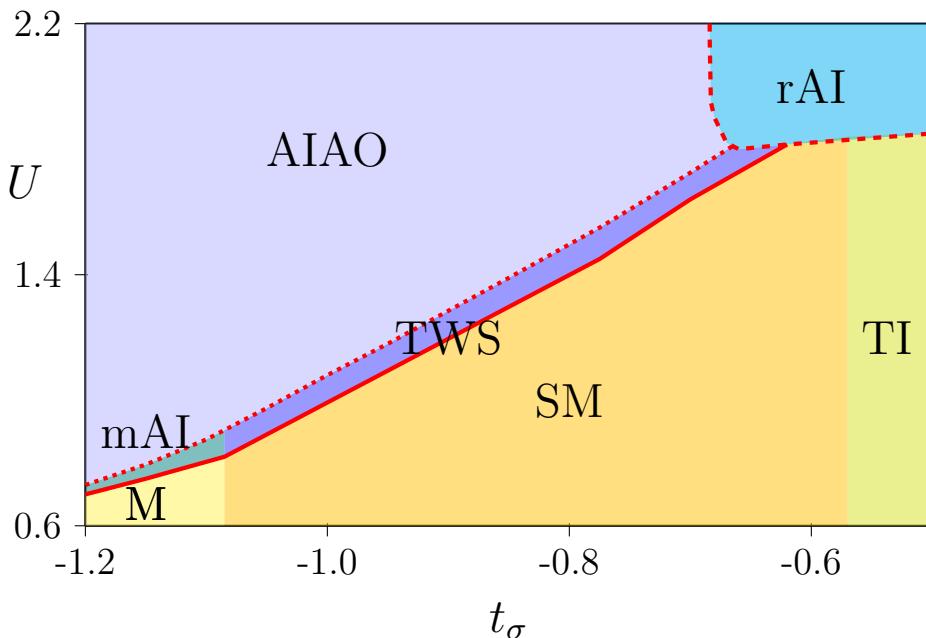


Abbildung 3.1: Mean-Field-Phasendiagramm. In den blauen Regionen ist die Zeitumkehrsymmetrie gebrochen, in den gelben nicht. Die Abkürzungen werden im Haupttext erklärt. Durchgezogene Linien stehen für Phasenübergänge zweiter Ordnung, gestrichelte für solche erster Ordnung. Gepunktete Linien kennzeichnen Lifshitz-Übergänge.

Die magnetische Ordnung in der rAI-Phase unterscheidet sich von der Ordnung in den anderen drei Phasen, in denen \mathcal{T} spontan gebrochen wird. Bei den Phasenübergängen zwischen der rAI-Phase und benachbarten Phasen handelt es sich um Quanten-Phasenübergänge erster Ordnung. Die Übergänge von Metall und Semimetal in die metallische Phase mit magnetischer Ordnung bzw. in die Weyl-Semimetalphase sind von zweiter Ordnung. Lifshitz-Übergänge markieren das Ende dieser Phasen und den Übergang zum Isolator mit magnetischer Ordnung. Bei diesen Übergängen ändert sich die Topologie der Fermi-Fläche, ohne dass zusätzliche Symmetrien gebrochen werden.

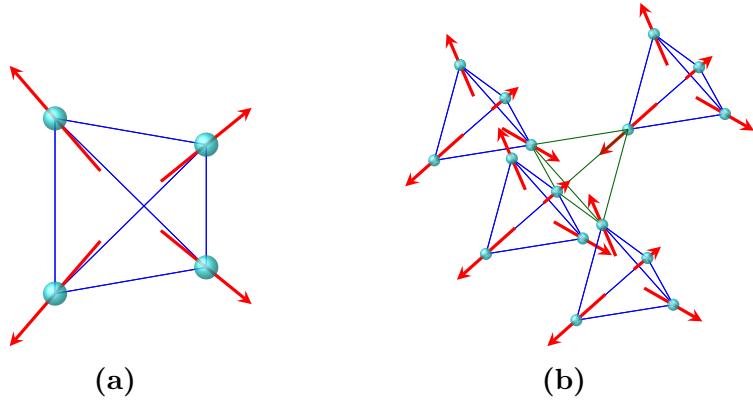


Abbildung 3.2: Magnetische Ordnung für die TWS-, mAI- und AIAO-Phasen. An einem separat betrachteten Tetraeder zeigen alle Momente nach außen (a) oder nach innen. Betrachtet man, wie in (b), einen größeren Ausschnitt des Pyrochloorgitters, dann wechseln sich Tetraeder mit Spinorientierung nach innen und außen ab.

3.1.1 Magnetische Ordnung im Phasendiagramm

Wir betrachten zunächst die magnetische Ordnung in den TWS-, mAI- und AIAO-Phasen. Mit Überschreiten eines von t_σ abhängigem kritischen Wertes der Hubbard-Wechselwirkung erhalten die magnetischen Momente an den Gitterplätzen endliche Erwartungswerte. Die sich einstellende Ordnung ist antiferromagnetisch und die Erwartungswerte der Spins an den Gitterplätzen lauten:

$$\mathbf{S}_0 = \frac{\alpha}{2\sqrt{3}}(1, 1, 1), \quad (3.7)$$

$$\mathbf{S}_1 = \frac{\alpha}{2\sqrt{3}}(1, -1, -1), \quad (3.8)$$

$$\mathbf{S}_2 = \frac{\alpha}{2\sqrt{3}}(-1, 1, -1), \quad (3.9)$$

$$\mathbf{S}_3 = \frac{\alpha}{2\sqrt{3}}(-1, -1, 1) \quad (3.10)$$

mit der Polarisation α , für die $-1 < \alpha < 1$ gilt. Diese Ordnung heißt *All-in-all-out*-Ordnung (AIAO), weil die Erwartungswerte der magnetischen Momente an jedem Gitterplatz entweder vom Tetraedermittelpunkt weg nach außen ($\alpha < 0$) oder zum Tetraedermittelpunkt hin nach innen zeigen ($\alpha > 0$).

Die Zustände zu α und $-\alpha$ sind entartet. Die AIAO-Ordnung bricht die Zeitumkehrssymmetrie, aber erhält die Inversionssymmetrie. Die gefundene Ordnung ist konsistent mit den Resultaten der Untersuchung lokalisierter Spins auf dem Pyrochloorgitter (siehe Abschnitt 3.1.4). Die gleiche Ordnung wurde für verschiedene Modelle und mit Methoden unterschiedlicher Komplexität gefunden. Neben der Hartree-Fock-Näherung für das einfache $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Bild [56], [11] finden sich darunter Mean-Field-Ansätze für Modelle, die trigonale Störungen berücksichtigen

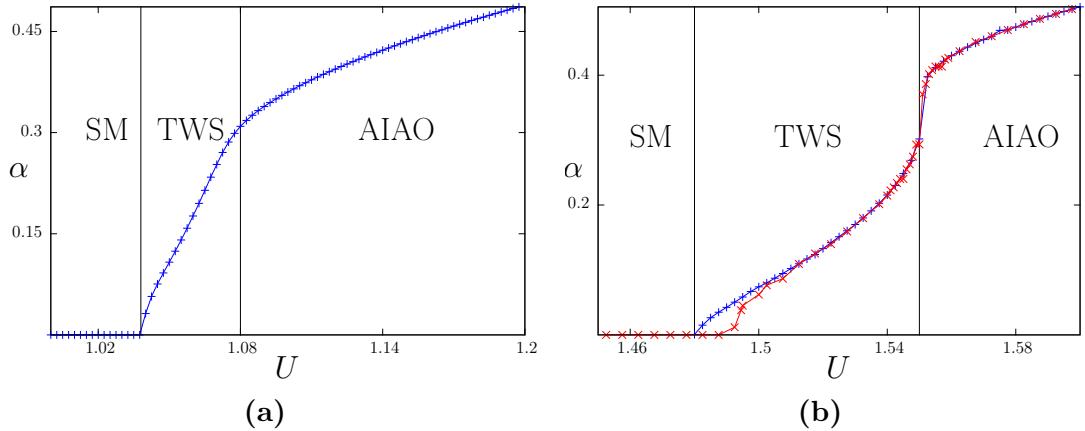


Abbildung 3.3: Entwicklung der Polarisation als Funktion von U für $t_\sigma = -1$ (a) und $t_\sigma = -0.775$ (b). In (b) werden zusätzlich die Ergebnisse der Minimierung (rot) und der iterativen Lösung der Selbstkonsistenz-Gleichungen verglichen. In der Nähe des Phasenübergangs zweiter Ordnung sind die Ergebnisse der Iteration in besserer Übereinstimmung mit [56] als die der Minimierung.

[13], oder nur NN-Hüpfprozesse berücksichtigen [61]. Die Ordnung ergibt sich auch mit besseren Mean-Field-Theorien, die lokale Freiheitsgrade innerhalb von Clustern exakt und die Freiheitsgrade außerhalb selbstkonsistent behandelt (CD-MFT) [62], unter Anwendung der lokalen Spindichtenäherung und Berücksichtigung der Hubbard-Abstoßung (LSDA + U) [13] oder lokaler Dichtenäherung und dynamischer Mean-Field-Theorie (LDA + DMFT) [63], auch wenn die Phasen, in denen diese Ordnung auftritt, sich in den einzelnen Modellen unterscheiden. So wird etwa nicht immer eine Weyl-Phase gefunden. Experimentelle Hinweise auf die AIAO-Ordnung werden zum Beispiel in [64] diskutiert.

Für festes t_σ wird die Entwicklung der Polarisation α in Abhängigkeit von der Hubbard-Wechselwirkung betrachtet. Abbildung 3.3 zeigt diese Entwicklung für $t_\sigma = -0.775$ und $t_\sigma = -1$, also jeweils entlang eines Schnitts durch das Phasendiagramm, der Semimetall, topologisches Weyl-Semimetall und Isolator mit AIAO-Ordnung beinhaltet. Ab einem kritischen Wert der Hubbard-Wechselwirkung werden die Erwartungswerte der Spins von Null verschieden und steigen bei weiterer Vergrößerung von U an. In den Abbildungen 3.3(a) und 3.3(b) sind Phasenübergänge zweiter Ordnung für den Übergang von Semimetall in die topologische Phase erkennbar. Größter Unterschied der beiden Entwicklungen von α ist der Sprung der Magnetisierung, der den Übergang vom topologischen Semimetal in die isolierende Phase begleitet, für $t_\sigma = -0.775$. Er charakterisiert diesen Lifshitz-Übergang für alle $t_\sigma > -0.78$ bis zum Verschwinden der Weyl-Phase bei $t_\sigma \approx -0.68$. Für $t_\sigma < -0.78$ steigt die Polarisation stärker an, so dass auch hier die Weyl-Phase nur in einem kleinen Intervall für U auftaucht, obwohl der

Sprung der Magnetisierung ausbleibt. Für Übergänge von der metallischen Phase (M) in die metallische Phase mit magnetischer Ordnung (mAI) und weiter in die isolierende Phase (AIAO) ergibt sich das gleiche qualitative Verhalten wie in Abbildung 3.3(a).

3.1.2 Metall und Semimetall – Vergleich der Bandstrukturen

Abbildung 3.4 stellt die Bandstrukturen entlang der üblichen ausgezeichneten Linien durch die Brillouin-Zone für metallische und semimetallische Phasen gegenüber. Das Semimetall zeichnet sich durch einen quadratischen Berührungs punkt der Bänder am Γ -Punkt bei der Fermi-Energie aus. Bereits diese Phase hat nicht-triviale Eigenschaften. Moon *et al.* [65] zeigen, dass diese Phase durch einen auf Luttinger [66] zurückgehenden Hamiltonoperator beschrieben werden kann und nennen sie Luttinger-Abrikosov-Beneslavskii-Phase. Für sinkendes Hüpfmatrix- element t_σ ändert sich die Bandstruktur dergestalt, dass das Energieniveau des untersten unbesetzten Bandes am L -Punkt im Vergleich zum Niveau am Γ -Punkt, wo sich oberstes besetztes und unterstes unbesetztes Band treffen, sinkt. Beim Übergang von Semimetall zu Metall ist die Energie dieser Bänder an beiden Punkten gleich, in der metallischen Phase liegt der quadratische Berührungs punkt der Bänder am Γ -Punkt energetisch höher als das Energieniveau des in der Semime tallphase unbesetzten Bandes am L -Punkt. Entsprechend liegt die Fermi-Energie irgendwo zwischen beiden Werten und es kommt zur Ausbildung von elektron- und lochartigen Fermi-Flächen. Auch in der metallischen Phase existieren die Bandkreuzungspunkte. Durch Verdrehen der kegelförmigen Dispersion um den Weyl-Punkt in der topologischen Semimetallphase entstehen wieder elektron- und lochartige Fermi-Flächen, wobei der Kreuzungspunkt nicht entarteter Bänder erhalten bleibt. In Analogie zu [56], [61] und [11] heißt diese Phase hier mAI-Phase, obige Beobachtung wirft allerdings die Frage nach ihrem topologischen Charakter auf. In Abschnitt 3.2.2 wird dies genauer diskutiert.

3.1.3 Magnetische Ordnung und Temperaturabhängigkeit

Die Bestimmung der Mean-Field-Parameter wird an verschiedenen Punkten im Phasendiagramm für verschiedene Temperaturen wiederholt. Das Ergebnis entspricht den Erwartungen. Die Polarisation verschwindet bei stets gleich bleibender AIAO-Orientierung der Spins. Die Weyl-Phase ist nur bis zu sehr viel kleineren Temperaturen stabil als die isolierende AIAO-Ordnung. Wegen der größer werdenden Energielücke für steigendes U ist dies so zu erwarten. Auch der Verlauf der Polarisation zeigt typisches Mean-Field-Verhalten. Der Vollständigkeit halber ist der Verlauf der Polarisation für Weyl-Phase und AIAO-Isolator in Abbildung

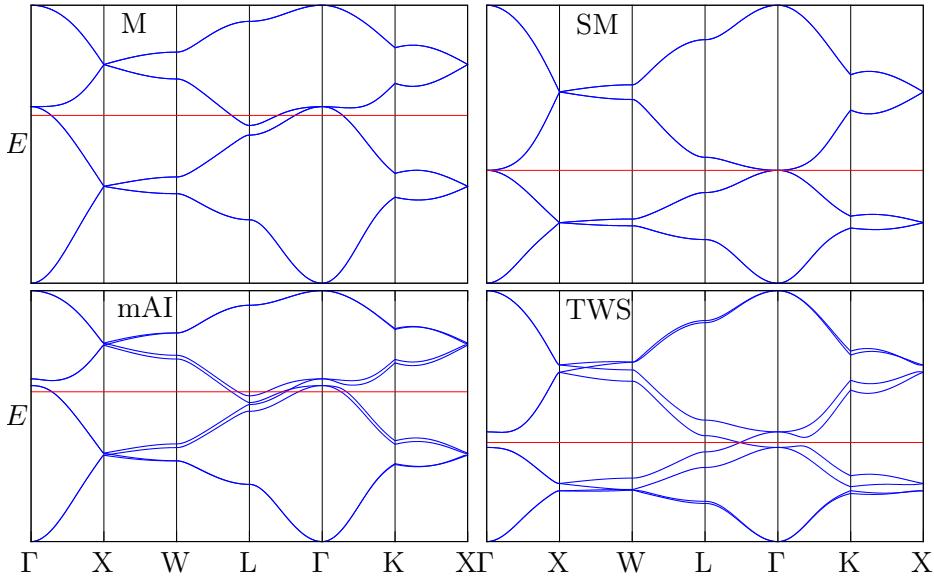


Abbildung 3.4: Bandstrukturen in den metallischen (links) und semimetallischen Phasen (rechts). Die obere Zeile ($U = 0$) zeigt die Phasen M ($t_\sigma = -1.2$) und Semimettal ($t_\sigma = -1$), die untere Zeile mAl ($t_\sigma = -1.2, U = 0.725$) und TWS ($t_\sigma = -1, U = 1.025$).

3.5 dargestellt.

3.1.4 Die rAl-Ordnung

Für starke Coulomb-Wechselwirkung und $t_\sigma \approx -0.682$ ändert sich die magnetische Ordnung. Die AIAO-Konfiguration ist zwar weiterhin eine selbstkonsistente Lösung, aber nicht länger diejenige mit der niedrigsten freien Energie. Gleicher gilt für den umgekehrten Weg aus der neu geordneten Phase zur AIAO-Ordnung (Abbildung 3.6(a)). Die magnetischen Momente nehmen in der neuen Phase die Form

$$\mathbf{S}_0 = (a, b, b), \quad \mathbf{S}_1 = (a, -b, -b), \quad \mathbf{S}_2 = (-a, b, -b), \quad \mathbf{S}_3 = (-a, -b, b) \quad (3.11)$$

an. Die Phase ist antiferromagnetisch. Sie ist mit der AIAO-Konfiguration über eine Rotation der magnetischen Momente verknüpft. Dazu werden die Eckpunkte paarweise zusammengefasst. Die magnetischen Momente an den Eckpunkten werden jetzt in den Ebenen gedreht, die das Eckpunktelpaar und den Mittelpunkt der gegenüberliegenden Tetraederkante enthält. Um die oben angegebene Ordnung zu erhalten, wurden \mathbf{S}_0 und \mathbf{S}_1 in der Ebene gedreht, die die Tetraederpunkte 0 und 1, sowie den Punkt $(1, 1/2, 1/2)$, den Mittelpunkt der Verbindungsgeraden der Eckpunkte 0 und 2, enthält. Die Drehwinkel für beide Momente haben den gleichen Betrag, aber unterschiedliches Vorzeichen. Zeigen alle Spins auf einem Tetraeder nach innen, vergrößert die Drehung den spitzen Winkel, den zwei Spins

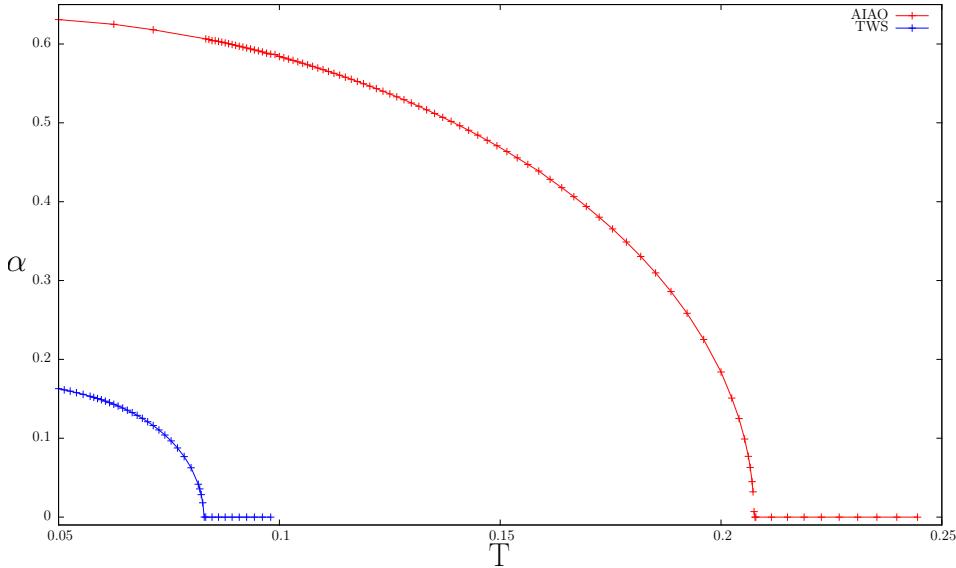


Abbildung 3.5: Temperaturabhängigkeit der Polarisation. In der Weyl-Phase verschwindet die Polarisation sehr viel früher. Die Temperatur ist in Einheiten von t_{oxy} angegeben.

einschließen. Zeigen alle Spins nach außen, muss die Drehung den stumpfen Winkel verkleinern. Es gibt drei Möglichkeiten, die Eckpunkte zu Paaren zusammenzufassen. Außerdem bleibt die freie Energie bei Invertierung aller Spins erhalten. Der Grundzustand ist also sechsfach entartet. Welcher der Zustände sich bei der numerischen Berechnung ergibt, hängt von den Startwerten ab. Die Phase wurde aus naheliegenden Gründen *rotated All-in-all-out*-Konfiguration (rAI) getauft. Der Übergang vom topologischen Isolator für festes t_σ und variiertes U in diese Phase ist ebenfalls erster Ordnung.

Für $U \gg t_i$ kann der Tight-Binding-Hamiltonoperator mit Wechselwirkung durch Störungsrechnung in einen Hamiltonoperator überführt werden, der lokalisierte Spins auf dem Pyrochlor-Gitter beschreibt. Ein solches Modell hilft dabei, den Phasenübergang von der AIAIO-Ordnung in die rAI-Ordnung und die Ordnung selbst besser zu verstehen. Die folgende Diskussion orientiert sich an [61]. Hüpfprozesse zwischen übernächsten Nachbarn werden vernachlässigt, um die magnetische Ordnung mit [67] vergleichen zu können. Dafür wird in Kauf genommen, den Phasenübergang nur qualitativ diskutieren zu können. Ausgangspunkt der Überlegungen ist der Hamiltonoperator

$$H_{12} = J\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2 + \mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) + \mathbf{S}_1^i \Gamma^{ij} \mathbf{S}_2^j + \dots, \quad (3.12)$$

der die effektive magnetische Wechselwirkung zwischen zwei benachbarten Spins beschreibt. Neben dem isotropen Superaustausch $J\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$ ergeben sich durch störungstheoretische Behandlung einer schwachen Spin-Bahn-Wechselwirkung $\lambda \mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$

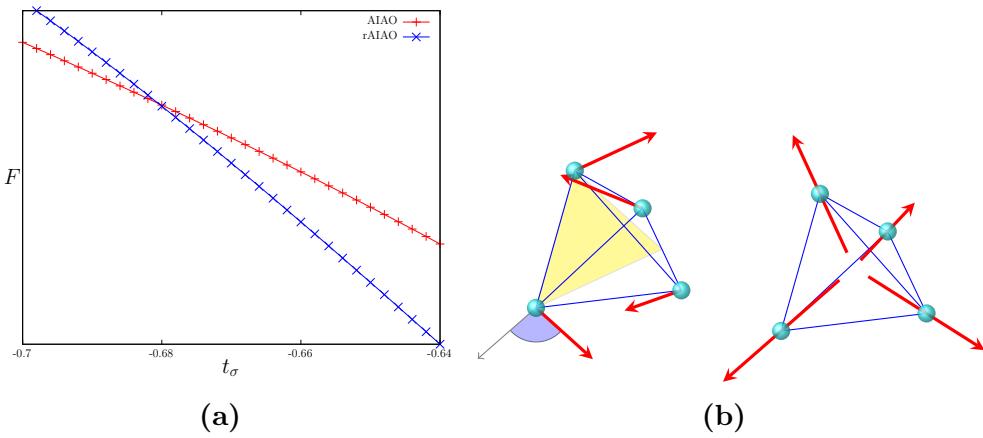


Abbildung 3.6: (a) Freie Energie für die magnetischen Konfigurationen im Vergleich. Die Freie Energie hat nahe des Übergangs zwei lokale Minima. Beim Phasenübergang haben beide Minima den gleichen Wert. Tief in der AIAO-Phase verschwindet das zweite Minimum. (b) rAI- und AIAO-Konfiguration im Vergleich. Ein gezeichnet sind die Ebene, in der zwei der Spins rotiert werden, sowie ein AIAO-Spin zum Vergleich. Der Drehwinkel beträgt hier $\pi/2$.

[68] noch weitere Terme. Berücksichtigt werden nur die Ordnungen λ^0 und λ^1 , die den ersten beiden Summanden in Gleichung (3.12) entsprechen. Der Beitrag $\mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$ heißt Dzyaloshinski-Moriya-Wechselwirkung (DM) [68], [69]. Die möglichen Richtungen von \mathbf{D}_{12} werden durch die Moriya-Regeln [68] festgelegt. Sie hängen von der Kristallsymmetrie ab. Lediglich das Vorzeichen des Vektors ist unbekannt. Es wird – wie die folgende Diskussion zeigt – durch mikroskopische Details bestimmt. Wenn die DM-Wechselwirkung für zwei Spins bekannt ist, dann folgen alle anderen Vektoren \mathbf{D}_{ij} durch Rotationen um $2\pi/3$ um die (111)-Richtungsvektoren. Wir betrachten deshalb nur

$$H_{12} = (c_{1\uparrow}^\dagger, c_{1\downarrow}^\dagger) \mathbf{h}^{12} \begin{pmatrix} c_{2\uparrow} \\ c_{2\downarrow} \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

mit $\mathbf{h}^{12} = t_1 \mathbb{1} + it_2 \mathbf{d}_{12} \cdot \boldsymbol{\sigma}$. Störungsrechnung liefert

$$\mathbf{D}_{12} = \frac{8t_1 t_2}{U} \mathbf{d}_{12}. \quad (3.14)$$

Das Produkt $t_1 t_2$ bestimmt das Vorzeichen der DM-Wechselwirkung. Die Zusammenhänge zwischen den mikroskopischen und den symmetrieerlaubten Hüpfparametern sind aus Abschnitt 2.1.2 bekannt. Mit der Parameterkonfiguration aus 3.6, ergibt sich als Bedingung für den Vorzeichenwechsel von $t_1 t_2$ ein lediglich von t_σ

abhängiger Ausdruck:

$$t_1 t_2 = \left(\frac{130}{243} + \frac{785}{2916} t_\sigma \right) \left(\frac{28}{243} + \frac{125}{729} t_\sigma \right) \geqslant 0. \quad (3.15)$$

Wenn der Ausdruck positiv (negativ) ist, dann zeigt der Vektor \mathbf{D}_{12} parallel (antiparallel) zum Vektor vom Eckpunkt 3 nach 4. Entsprechend der Nomenklatur aus Referenz [67] nennen wir diese Fälle direkte (indirekte) DM-Wechselwirkung. Es ergibt sich eine

- indirekte DM-W für $t_\sigma < -\frac{312}{157} \vee t_\sigma > -\frac{84}{125}$,
- direkte DM-W in allen anderen Fällen.

Zu erwarten ist also eine qualitative Änderung der Ordnung, wenn t_σ den Wert $84/125 = 0.672$ überschreitet. Weder wurden die übernächsten Nachbarn berücksichtigt, noch hat die Annahme $U \gg t_i$ in dem betrachteten Bereich vollständige Berechtigung, deshalb ist auch keine bessere Übereinstimmung mit dem im Phasendiagramm gefundenen Wert $t_\sigma = -0.682$ zu erwarten. Auch die magnetische Ordnung kann mit dem Modell lokalisierter Spins erklärt werden. Werden a und b aus Gleichung (3.11) mit den üblichen Kugelkoordinaten parametrisiert werden, dann ergibt sich zwischen den beiden Winkeln θ und ϕ der Zusammenhang

$$\theta = \text{arccot} \sin(\phi). \quad (3.16)$$

In [67] wird der Hamiltonoperator aus Gleichung (3.12) auf dem Pyrochlordgitter untersucht. Abhängig davon, ob die DM-Wechselwirkung direkt oder indirekt ist, werden unterschiedliche Ordnungen für den magnetischen Grundzustand gefunden. Für direkte Wechselwirkung ergibt sich die AIAO-Ordnung. Für indirekte Wechselwirkung hängt das Ergebnis von den verwendeten Methoden ab. In jedem Fall ergeben sich auch hier $\mathbf{q} = 0$ Strukturen. Mit Monte-Carlo-Simulationen findet man im Grundzustand koplanare Spins in einer der drei Ebenen xy , yz , zx [67]. Mean-Field-Theorie liefert indessen eine kontinuierlich entartete Grundzustandsmannigfaltigkeit, in die sich das Monte-Carlo-Resultat einbettet, und die man durch Drehen der Spins aus dem koplanarem Zustand erhält. Der Spin am Gitterplatz 0 aus der Grundzustandsmannigfaltigkeit ist parallel zu

$$\mathbf{S}_0 = (\sin \theta \cos \phi, \sin \theta \sin \phi, \cos \theta) \quad (3.17)$$

und genügt der Gleichung

$$\frac{\pi}{2} - \theta = \arctan \left[\sqrt{2} \sin \left(\phi - \frac{3}{4}\pi \right) \right]. \quad (3.18)$$

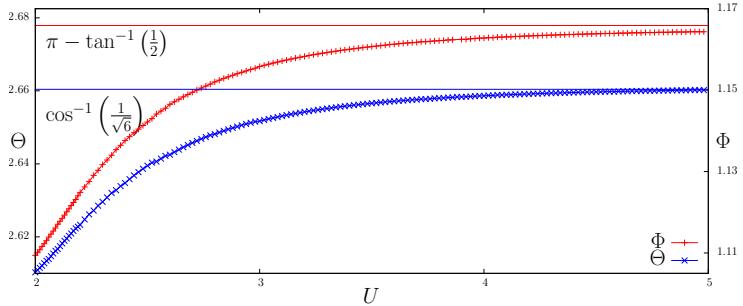


Abbildung 3.7: Orientierung der magnetischen Momente für $t_\sigma = -0.5$ als Funktion von U . Für große Wechselwirkung konvergieren die Winkel so, dass rAI- und AIAO-Ordnung durch paarweise Rotationen um $\pi/2$ verbunden sind [siehe auch Abbildung 3.6(b)].

Nummerierung der Gitterpunkte und Definition der Winkel sind anders als in [67] gewählt, um Konsistenz mit der bisherigen Diskussion zu gewährleisten. Der Ausdruck (3.18) beinhaltet für bestimmte Winkel koplanare Spins in der xy -Ebene.

Wie hängt das Ergebnis aus [67] mit den berechneten Konfigurationen zusammen? Die Gleichungen (3.16) und (3.18) sind für $\theta_0 = \arccos(1/\sqrt{6})$ und $\phi_0 = \pi - \arctan(1/2)$ simultan erfüllt. Diese Konfiguration geht durch Drehungen aus der AIAO-Ordnung hervor, ist aber ebenso Teil der Grundzustandskonfiguration für das Modell lokalisierter Spins auf dem Pyrochlordgitter mit indirekter DM-Wechselwirkung. Die numerischen Rechnungen zeigen, dass dies genau die Winkel (θ, ϕ) sind, die im Limes $t/U \rightarrow 0$, in dem das Modell lokalisierter Spins gültig ist, die freie Energie minimieren. In Abbildung 3.7 ist das Konvergenzverhalten der Winkel für festes t_σ als Funktion von U zu sehen. Für festes U und $|t_\sigma| \rightarrow 0$ beobachtet man den gleichen Verlauf. Diese Konfiguration entspricht einer Drehung aller Winkel um $\pi/2$ relativ zu der AIAO-Konfiguration.

Die wesentlichen Aussagen dieses Abschnitts werden kurz zusammengefasst: Für große U und betragsmäßig kleines t_σ finden wir die rAI-Konfiguration, die von den angrenzenden Phasen durch einen Phasenübergang erster Ordnung getrennt ist. Den Übergang zwischen rAI- und AIAO-Ordnung existiert auch in einem Spin-Modell, wenn die DM-Wechselwirkung das Vorzeichen wechselt. Die rAI- geht aus der AIAO-Konfiguration durch paarweises Drehen der magnetischen Momente hervor. Im Limes $t/U \rightarrow 0$ stimmt die hier gefundene und die Konfiguration für lokalisierte Spins überein.

Dieses Kapitel sei mit einer Anmerkung zu den Moriya-Regeln [68] abgeschlossen. Diese Regeln bestätigen die Herleitung des allgemeinsten Tight-Binding-Hamiltonoperators auf dem Pyrochlordgitter. \mathbf{D}_{ij} ist parallel zu \mathbf{d}_{ij} . Die dritte Regel von Moriya [68] lautet: Wenn es eine Spiegelebene gibt, die i und j enthält, dann ist \mathbf{D}_{ij} senkrecht zu dieser Ebene. Daraus folgt, dass \mathbf{d}_{ij} par-

allel zu der i und j gegenüberliegenden Tetraederkante ist. Andernfalls ergäbe die Störungsrechnung unzulässige Vektoren \mathbf{D}_{ij} . Die für Hüpfprozesse zwischen übernächsten Nachbarn relevante Moriya-Regel lautet: Wenn durch den Mittelpunkt der Verbindungsgeraden von i nach j eine zweizählige Rotationsachse führt, dann muss \mathbf{D}_{ij} senkrecht auf dieser Achse stehen. Genau dieses Resultat ergaben die Betrachtungen aus Abschnitt 2.1.1. Die Moriya-Regeln liefern also konsistente Ergebnisse. Teilweise findet man sie als einzige Begründung des symmetrieerlaubten Hamiltonoperators [11], [56].

3.1.5 Der topologische Isolator

Für kleine Wechselwirkungen U geht das Semimetall mit steigendem t_σ in eine isolierende Phase über, da sich der quadratische Berührpunkt der Bänder bei Γ öffnet. Dies geschieht für $t_\sigma \approx -0,57$. Für $U \lesssim 1,88$ gibt es keine magnetische Ordnung; ein topologischer Isolator wäre möglich. Auf Grund der Inversionssymmetrie können die vier \mathbb{Z}_2 -Invarianten aus den Eigenwerten des Paritätsoperators gefüllter Bänder an den TRIM berechnet werden. Die TRIM sind

$$\Gamma_{\{n_1 n_2 n_3\}} = \frac{1}{2} (n_1 \mathbf{G}_1 + n_2 \mathbf{G}_2 + n_3 \mathbf{G}_3) \quad (3.19)$$

mit $n_i = 0, 1$. Das der Pyrochlorstruktur zu Grunde liegende Bravais-Gitter ist kubisch flächenzentriert. Entsprechend sind die Vektoren \mathbf{G}_i die Basisvektoren des kubisch raumzentrierten Gitters, also $\mathbf{G}_1 = 2\pi/a(-1, 1, 1)$, usw. Alle Tetraedereckpunkte an allen Bravais-Gitterpunkten sind Inversionszentren. Die Wahl des Inversionszentrum legt die Form des Paritätsoperators fest.

Zunächst wird die Wirkung des Paritätsoperators im Ortsraum betrachtet, $\mathcal{P}\psi(\mathbf{b}_i + \mathbf{R})$. \mathbf{b}_i legt die Position innerhalb der Basis und \mathbf{R} den Bravais-Gitterpunkt fest. Wählt man den Ursprung als Inversionszentrum, ergibt sich

$$\mathcal{P}\psi(\mathbf{b}_i + \mathbf{R}) = \psi(-\mathbf{b}_i - \mathbf{R}) = \psi(\mathbf{b}_i - \mathbf{R} - 2\mathbf{b}_i). \quad (3.20)$$

Der Paritätsoperator ändert nicht die Position innerhalb der Basis, sondern lediglich den Bravais-Gitterpunkt. Dieser wird am Ursprung gespiegelt und zusätzlich um den Gittervektor $-2\mathbf{b}_i$ verschoben (Abbildung 3.8). Mit der allgemeinen Wahl von \mathbf{b}_j als Inversionszentrum ändert sich der Vektor $\mathbf{R} + \mathbf{b}_i$ unter Anwendung des Paritätsoperators \mathcal{P}_j um das Doppelte des Verbindungsvektors zum Inversionszentrum:

$$\mathcal{P}_j \psi(\mathbf{b}_i + \mathbf{R}) = \psi(\mathbf{b}_i - \mathbf{R} + 2(\mathbf{b}_j - \mathbf{b}_i)). \quad (3.21)$$

Mit dem Inversionszentrum bei 0 ergibt sich die Wirkung auf die Operatoren $c_{k\sigma}^\dagger$ im Impulsraum aus der Fourierdarstellung der Operatoren und Ausnutzen der

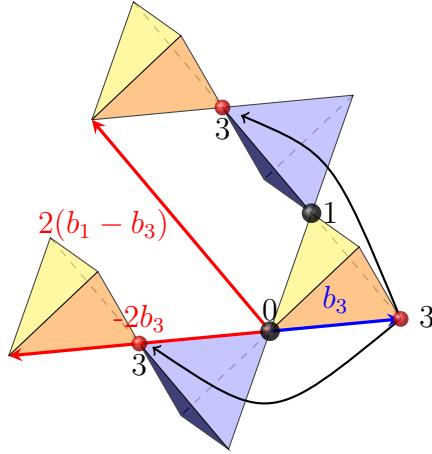


Abbildung 3.8: Wirkung des Paritätoperators auf dem Pyrochloregitter in Abhängigkeit vom Inversionszentrum (schwarz). Die roten Vektoren sind die neuen Bravais-Gittervektoren. Die Basisposition (hier 3) ändert sich nie.

TRIM	n_1	n_2	n_3	ξ_0^0	ξ_2^0	ξ_0^1	ξ_2^1	ξ_0^2	ξ_2^2	ξ_0^3	ξ_2^3
0	0	0	0	+	+	+	+	+	+	+	+
1	1	0	0	+	+	-	-	+	+	+	+
2	0	1	0	+	+	+	+	-	-	+	+
3	0	0	1	+	+	+	+	+	+	-	-
4	0	1	1	\pm	\mp	\pm	\mp	\pm	\mp	\pm	\mp
5	1	0	1	\pm	\mp	\pm	\mp	\pm	\mp	\pm	\mp
6	1	1	0	\pm	\mp	\pm	\mp	\pm	\mp	\pm	\mp
7	1	1	1	-	-	+	+	+	+	+	+

Tabelle 3.1: Verteilung der Paritätseigenwerte ξ_m^i auf die Kramers-Partner m in Abhängigkeit vom Inversionszentrum i

Wirkung im Ortsraum zu der einfachen Diagonalform [3]

$$\mathcal{P}(\Gamma_a) = \text{diag}(e^{2i\Gamma_a \cdot \mathbf{b}_0}, e^{2i\Gamma_a \cdot \mathbf{b}_0}, e^{2i\Gamma_a \cdot \mathbf{b}_1}, e^{2i\Gamma_a \cdot \mathbf{b}_1}, e^{2i\Gamma_a \cdot \mathbf{b}_2}, e^{2i\Gamma_a \cdot \mathbf{b}_2}, e^{2i\Gamma_a \cdot \mathbf{b}_3}, e^{2i\Gamma_a \cdot \mathbf{b}_3}) \quad (3.22)$$

mit der üblichen Reihenfolge der Basisvektoren. Alle Eigenwerte des Paritätsoperators an allen TRIM für alle möglichen Inversionszentren können Tabelle 3.1 entnommen werden. Für die TRIM Γ_4 , Γ_5 und Γ_6 kann den Kramers-Paaren keine eindeutiger Eigenwert zugeordnet werden. Gesichert ist nur, dass sich ξ_0^i und ξ_1^i im Vorzeichen unterscheiden. Details finden sich in Anhang A.3.

Die Verteilung der ξ_i hängt von der Wahl des Inversionszentrums ab. Unabhängig davon sind hingegen die topologischen Invarianten. Die Größen δ_i konstruiert man aus Tabelle 3.1. Wenn genau ein n_i verschwindet, sind sie negativ,

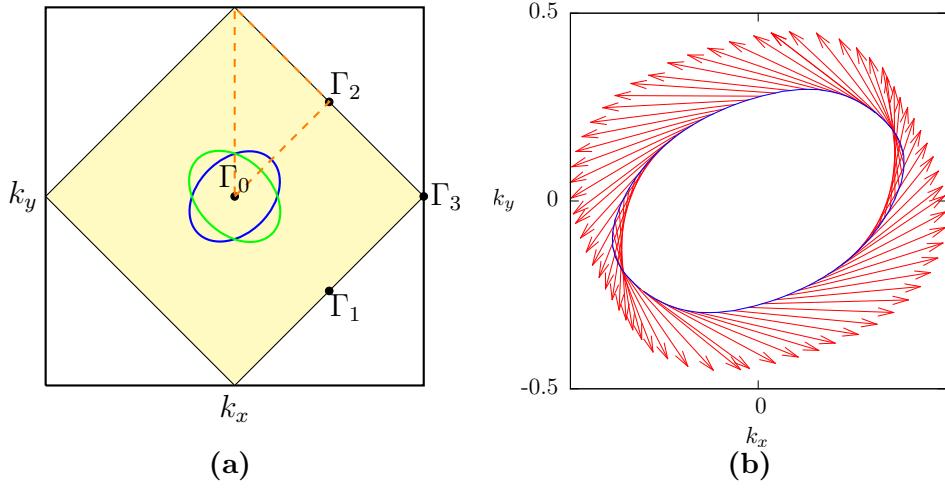


Abbildung 3.9: (a) zeigt die Oberflächen-Brillouin-Zone (gelb) für eine Oberfläche senkrecht zur $(1\bar{1}0)$ -Richtung. Eingezeichnet sind Fermi-Linien für die obere (blau) und untere (grün) Oberfläche und die TRIM. Entlang der orangefarbenen Linie ist das Spektrum in Abbildung 3.10 dargestellt. (b) zeigt den Erwartungswert des Spins für Zustände an der Fermi-Kante.

andernfalls positiv. Wir erhalten

$$(-1)^\nu = (-1)^3 1^5 = -1 \Rightarrow \nu = 1 \quad (3.23)$$

Damit ist diese Phase als starker topologischer Isolator identifiziert. Für die anderen Invarianten fixieren wir ein n auf eins, etwa n_1 . Das Produkt läuft über die möglichen Werte von n_2 und n_3 . Mit

$$\nu_1 = \nu_2 = \nu_3 = 0 \quad (3.24)$$

ergibt sich ein starker topologischer Isolator mit der Signatur $(1; 000)$. Das Ergebnis ist konsistent mit [3].

Die Oberfläche eines starken topologischen Isolators ist ein topologisches Metall. Wir untersuchen einen endlich ausgedehnten Festkörper, bestehend aus 30 Schichten senkrecht zur (001) -Richtung, für die Parameterkonfiguration $t_\sigma = -0.5$ und $U = 1.5$. In Abschnitt 3.3 wird die Konstruktion des Hamiltonoperators ausführlich diskutiert. Die Brillouin-Zone wird von den Vektoren parallel zur $(1\bar{1}0)$ - und zur (110) -Richtung aufgespannt und ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Die eingezeichneten TRIM haben die Koordinaten

$$\Gamma_0 = (0, 0, 0), \quad \Gamma_1 = \frac{\pi}{a}(1, -1, 0), \quad \Gamma_2 = \frac{\pi}{a}(1, 1, 0), \quad \Gamma_3 = \frac{2\pi}{a}(1, 0, 0). \quad (3.25)$$

Im folgenden werden alle Impulse in Einheiten von $2\pi/a$ angegeben. Die beiden

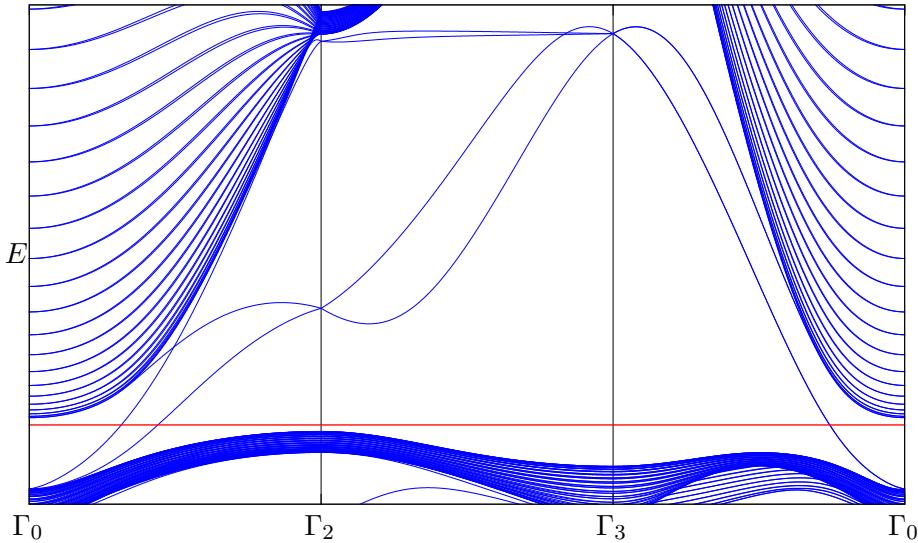


Abbildung 3.10: Ausschnitt aus dem Spektrum des Hamiltonoperators für ein System aus 30 Schichten in (001)-Richtung. Durch die Energiefülle laufen jeweils zwei Kramers-Paare von Oberflächenbändern. Für die Strecke $\Gamma_3\Gamma_0$ sind die Bänder entartet.

durchgezogenen Linien in Abbildung 3.9(a) zeigen die Fermi-Kurven auf der oberen (grün) und auf der unteren (blau) Oberfläche des Festkörpers. Diese lassen sich durch Rotationen um $\pi/2$ ineinander überführen. Grund dafür ist, dass bei der Konstruktion des Hamiltonoperators nur ganze Tetraeder gestapelt wurden. Die betrachtete Geometrie beginnt in der untersten Schicht mit den Tetraederpunkten 0 und 3 und endet mit den Ecken 1 und 2. Durch $\pi/2$ -Drehungen um die (001)-Richtung lassen sich 0 und 3 in 1 und 2 überführen. Zur Berechnung der Fermi-Kurven wurde das chemische Potential für periodischen Randbedingungen bzw. den unendlich ausgedehnten Festkörper berechnet und angenommen, dass dieses sich durch Reduktion auf eine endliche Geometrie nicht ändert.

Abbildung 3.10 zeigt das Spektrum entlang des in Abbildung 3.9(a) eingezeichneten Weges. Erwartet werden nicht triviale Verbindungen – im Sinne von Abschnitt 1.3.1 – zwischen Γ_0 und allen anderen TRIM und eine triviale Verbindung zwischen den übrigen TRIM untereinander. Genau dieses lässt sich in dem berechneten Spektrum erkennen. Entlang der Linien $\Gamma_0\Gamma_2$ und $\Gamma_3\Gamma_0$ schneiden die Oberflächenbänder die Fermi-Energie einmal, entlang $\Gamma_2\Gamma_3$ gibt es keinen Schnittpunkt. Entlang der Linien $\Gamma_0\Gamma_2$, sowie $\Gamma_2\Gamma_3$ sind vier Oberflächenbänder zu erkennen, die teilweise sehr nahe an den Bulk-Bändern verlaufen. Entlang der Diagonalen in der ersten Brillouin-Zone sind nur zwei solcher Bänder zu unterscheiden. Die Fermi-Kurven der oberen und unteren Oberfläche fallen dort zusammen. Alle Bänder sind zweifach entartet. Abbildung 3.11 zeigt, dass die

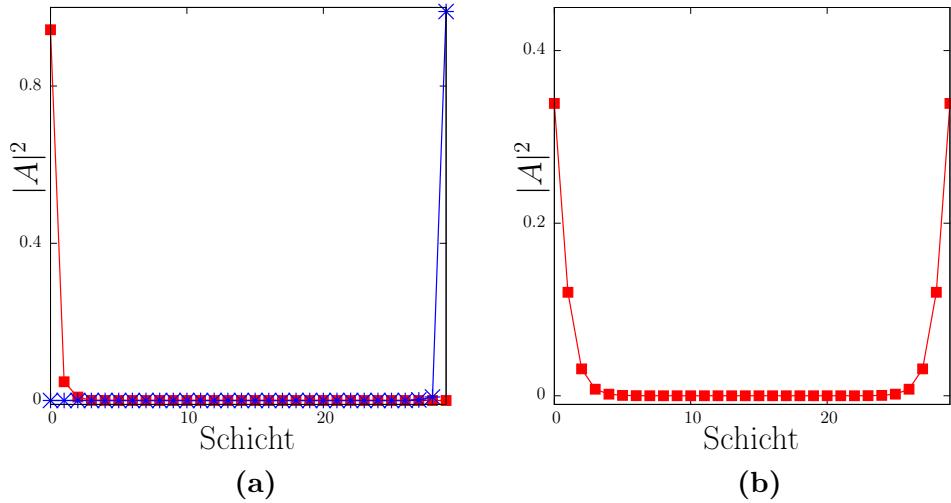


Abbildung 3.11: Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Fermionen in den einzelnen Tetraederschichten. (a) zeigt Zustände auf der Linie $\Gamma_2\Gamma_3$. Das energetisch niedrigere Kramers-Paar (blau) ist auf der Oberseite lokalisiert, die Zustände aus dem oberen Kramers-Paar (rot) auf der Unterseite. In (b) sieht man die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten für Zustände auf der Linie $\Gamma_3\Gamma_0$. Weil die Kramers-Paare auf dieser Linie zusammenfallen, ist es möglich, dass der numerisch berechnete Eigenvektor eine Überlagerung auf entgegengesetzten Seiten lokalisierter Eigenfunktionen ist.

betrachteten Dispersionskurven tatsächlich Oberflächenbänder sind. Abbildung 3.11(a) zeigt die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten, die jeweils zu dem unteren der beiden zwischen Γ_2 und Γ_3 erscheinenden Paare von Kramers-Partnern gehören, für $k_x = 0.375$ und $k_y = 0.625$. Die Bezeichnung $|A|^2$ ist ein Vorgriff auf Abschnitt 3.3. Das energetisch niedriger liegende Kramers-Paar beschreibt Fermionen, die auf der Oberseite des Festkörpers lokalisiert sind. Dies stimmt mit Abbildung 3.9(a) überein. Abbildung 3.11(b) zeigt die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen der Oberflächenbänder für $k_x = 0.5$ und $k_y = 0$, also zwischen Γ_3 und Γ_0 . Die beiden Kramers-Paare fallen energetisch zusammen. Jede Linearkombination der auf unterschiedlichen Oberflächen lokalisierten Eigenfunktionen löst die Schrödinger-Gleichung und die numerische Berechnung der Eigenvektoren wählt eine dieser Kombinationen aus. Für das in Abbildung 3.11(b) zu sehende Band ist der Energieeigenzustand eine Überlagerung zweier Zustände, die auf entgegengesetzten Seiten der endlichen Geometrie lokalisiert sind. Eine genauere Auflösung nach der Aufenthaltswahrscheinlichkeit in Untergittern ist ebenfalls möglich. Teilweise zeigt sich, dass die Fermionen vermehrt die stärker exponierten Gitterplätze besetzten, zum Beispiel 0 und 3 auf der Unterseite. In Abschnitt 3.3 wird diskutiert, wie die Aufenthaltswahrscheinlichkeit zu bestimmen ist.

Als weitere wichtige Eigenschaft des zweidimensionalen topologischen Metalls auf der Oberfläche des topologischen Isolators betrachten wir den Erwartungswert des Spins entlang der Fermi-Kurve. Für die Zustände an der Fermi-Kante, die auf der Oberseite lokalisiert sind, ist dieser in Abbildung 3.9(b) dargestellt. Tatsächlich verhält sich die Oberfläche wie ein halbes Metall [20], in dem Sinne, dass es an jedem Punkt entlang der Fermi-Linie genau eine Sorte Spin gibt. Wie erwartet rotiert der Erwartungswert mit \mathbf{k} um die Fermi-Kurve herum und sorgt für eine nichttriviale Berry-Phase, die Elektronen bei geschlossener Bewegung erhalten. Für die hier gewählte Oberfläche senkrecht zur (001)-Richtung liegt der Spin immer in der Ebene der Oberfläche ($S_z = 0$). Das ist nicht notwendigerweise so. Analoge Rechnung für eine Probe, die durch Schichtung in (011)-Richtung entsteht, ergibt, dass der Erwartungswert des Spins für Elektronen an der Fermi-Kante mit Impuls parallel zur (001)-Richtung in Richtung (1 $\bar{1}$ 0) zeigt, also parallel zum zweiten Basisvektor der Oberflächen-Brillouin-Zone. Für Impulse parallel zur (1 $\bar{1}$ 0)-Richtung zeigt der Erwartungswert in (011)-Richtung, also senkrecht zur Grenzfläche. In jedem Fall und auch hier ergibt sich aber eine nichttriviale Windung des Spins bei geschlossener Bewegung entlang der Fermi-Kurve. In [35] finden sich ähnliche Ergebnisse. Details zu den Oberflächen-Brillouin-Zonen sind Abschnitt 3.3 zu entnehmen.

3.2 Topologisches Weyl-Semimetall auf dem Pyrochlordgitter

Mit einsetzender Magnetisierung wird die Zeitumkehrsymmetrie \mathcal{T} gebrochen und die bisherige Entartung der Bänder aufgehoben. Die Existenz einer Weyl-Semimetallphase ist also möglich. Tatsächlich gibt es in dem Phasendiagramm einen kleinen, von t_σ abhängigen Bereich entlang der U -Achse, in dem das Bandspektrum trotz magnetischer Ordnung keine Energiefülle aufweist. In diesem Bereich werden sowohl das Weyl-Semimetall, als auch die Phase, die vorerst magnetisches Metall genannt wurde, realisiert. Das Weyl-Semimetall entsteht durch Aufspaltung des quadratischen Berührungs punktes des jeweils entarteten untersten unbesetzten und obersten besetzten Bandes am Γ -Punkt. Die linearen Kreuzungspunkte liegen auf der Verbindungs linie von Γ nach L. Deshalb gibt es insgesamt acht Weyl-Punkte mit den Koordinaten $(\pm x, \pm x, \pm x)$. Auf Grund der erhaltenen Inversionssymmetrie können wir diese in vier Paare aufteilen, die jeweils zwei Punkte mit den Koordinaten \mathbf{k}_{WP} und $-\mathbf{k}_{WP}$ enthalten. Für die Chiralitäten erwarten wir $\chi(\mathbf{k}_{WP}) = -\chi(-\mathbf{k}_{WP})$. In der Weyl-Phase liegen alle acht Kreuzungspunkte auf Höhe der Fermi-Energie. Das folgt sofort aus den Symmetrieeigenschaften des

k_x	+	-	-	+	+	-	+	-
k_y	+	-	+	-	-	+	+	-
k_z	+	-	+	-	+	-	-	+
Chiralität	-	+	+	-	+	-	+	-

Tabelle 3.2: Positionen und Chiralitäten der Weyl-Punkte. Die acht Weyl-Punkte lassen sich zu vier durch Inversionsymmetrie verbundenen Paaren gruppieren.

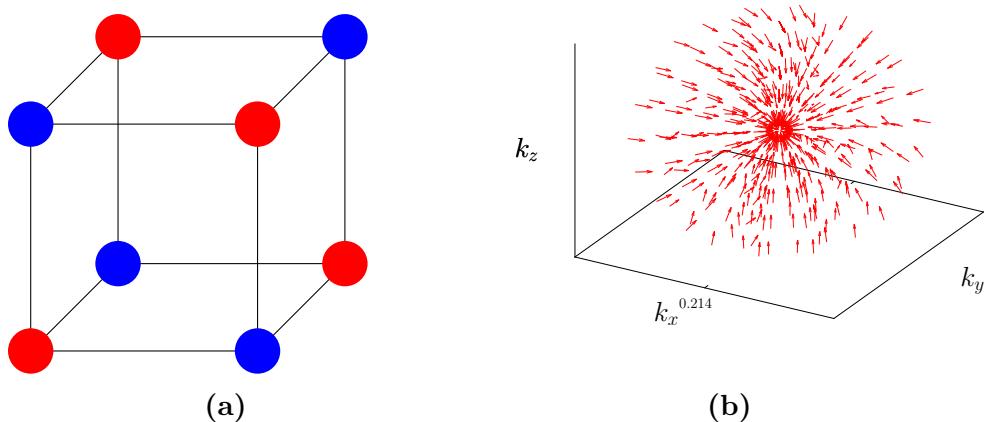


Abbildung 3.12: (a) Die Weyl-Punkte liegen auf den Ecken eines Würfels. Benachbarte Eckpunkte haben unterschiedliche Chiralität. (b) Ausschnitt aus der Brillouin-Zone um einen Weyl-Punkt herum. Dargestellt ist der Berry-Fluss.

Pyrochlordgitters und der Tatsache, dass die gefundene magnetische Ordnung diese Symmetrien erhält. Die erste theoretische Arbeit zu Weyl-Semimetallen auf dem Pyrochlordgitter findet nicht acht, sondern 24 Weyl-Punkte [4] in der magnetisch geordneten AIAO-Phase. Diese liegen abseits der hochsymmetrischen FL-Linie, so dass die dreizählige Rotationsachse in (111)-Richtung die Anzahl der Weyl-Punkte verdreifacht. Der topologische Charakter der Weyl-Punkte manifestiert sich in ihrer chiralen Ladung, die als Integral der Berry-Krümmung über eine den Weyl-Punkt enthaltende Kugel berechnet wird. Gleichung (1.31) wird zur Berechnung der Invarianten genutzt. Tasächlich verschwindet das Ergebnis immer, wenn kein Kreuzungspunkt innerhalb der Integrationsoberfläche liegt und ist sonst ganzzahlig und von Null verschieden. In Tabelle 3.2 sind die Ergebnisse der Berechnung aufgelistet.

Alle acht Weyl-Punkte bilden gemeinsam die Ecken eines Würfels [Abbildung 3.12(a)]. Die Würfelkanten und die Raumdiagonalen verbinden Weyl-Punkte unterschiedlicher Chiralität, die Flächendiagonalen Weyl-Punkte gleicher Chira-

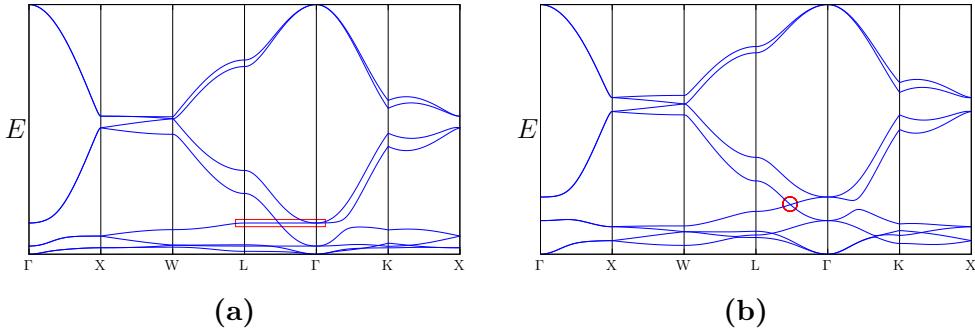


Abbildung 3.13: Bandstruktur ohne (a) und mit (b) Berücksichtigung der NNN-Hüpfprozesse. Die Entstehung aufrechter Weyl-Kegel ist ein Effekt der NNN-Hüpfprozesse.

lität. Bei der Untersuchung von Ladungsdichtewellen ist dieses Bild nützlich sein. Das *fermion doubling theorem* ist offensichtlich erfüllt. In Abbildung 3.12(b) ist der Berry-Fluss um den Weyl-Punkt mit Koordinaten $(+, +, +)$ dargestellt. Tatsächlich generiert er das Feld eines Monopols.

Dass der Weyl-Punkt der einzige Punkte der Brillouin-Zone ist, dessen Energie auf dem Niveau des Fermi-Levels liegt, ist ein Artefakt der Hüpfprozesse zwischen übernächsten Nachbarn. Abbildung 3.13 stellt die Bandstrukturen für eine Parameterkonfigurationen, für die die Weyl-Phase realisiert wird [Abbildung 3.13(b)] und für vernachlässigte NNN-Hüpfprozesse [Abbildung 3.13(a)] gegenüber. Im letzteren Fall erhält man dispersionslose Bänder entlang der Linie von Γ nach L und es bedarf der NNN-Wechselwirkung, um diese zu kippen, damit an Stelle einer Fermi-Linie der Weyl-Punkt tritt [56]. Die Polarisation ändert sich durch die vernachlässigten NNN-Hüpfprozesse kaum.

3.2.1 Die Weyl-Punkte - Entstehung und Annihilation

Für festes t_σ bewegen sich die Weyl-Punkte bei Erhöhung der Hubbard-Wechselwirkung an den Rand der Brillouin-Zone und verschmelzen dort paarweise (Abbildung 3.14). Durch den daraufhin erfolgenden Lifshitz-Übergang öffnet sich eine Bandlücke und die isolierende Phase wird erreicht. Wir visualisieren diesen Prozess auf zwei Arten. Wir betrachten die Bandstruktur und die in die Ebene, die Γ und einen L-Punkt enthält (in Abbildung 3.14 grün markiert), projizierte Berry-Krümmung. Für festes t_σ und vier verschiedene Werte von U ist beides in Abbildung 3.15 dargestellt. Die oberste Zeile zeigt das System kurz nach Einsetzen der magnetischen Ordnung. Entsprechend der Charakterisierung der Weyl-Punkte als chirale Ladungen ist in der rechten Spalte die Struktur eines Dipolfeldes zu erkennen. Nach unten hin nimmt die Hubbard-Abstoßung zu und die Weyl-Punkte unterschiedlicher Chiralität laufen kontinuierlich aufeinander zu.

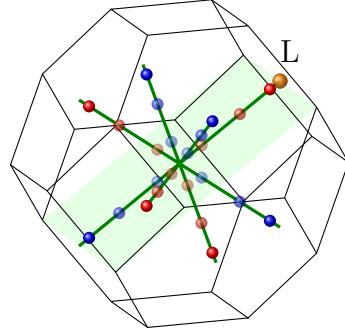


Abbildung 3.14: Bewegung der Weyl-Punkte in der dreidimensionalen Brillouin-Zone mit steigender Hubbard-Abstoßung vom Zentrum an den Zonenrand.

Die letzte Zeile zeigt die Berry-Krümmung und die Bandstruktur nach der Anihilation der Weyl-Punkte. In dem vergrößerten Ausschnitt der Bandstruktur ist zu erkennen, dass ein Lifshitz-Übergang stattgefunden hat. Die Darstellungen des Vektorfeldes der Berry-Krümmung zeigt, dass dieses nun weder Quellen noch Senken hat. Ob man eine kontinuierliche Evolution der Weyl-Punkte zu den Rändern der Brillouin-Zone, so wie hier für $t_\sigma = -1$, beobachten kann, hängt von der Entwicklung der Polarisation und damit den Hüpfmatrixelementen ab. Für $t_\sigma > -0.78$ wird die kontinuierliche Bewegung der Weyl-Punkte durch den abrupten Sprung der Polarisation beendet.

3.2.2 Die mAl-Phase: Topologisch oder trivial?

Die in Abbildung 3.1 links an das Weyl-Semimetall anschließende Phase wurde metallische AIAO-Phase genannt [56], [61], [11]. Neuere Erkenntnisse stellen dieses Klassifikationsschema aber in Frage.

Der allgemeinste Hamiltonoperator, der einen Weyl-Punkt beschreibt, lautet

$$H(\mathbf{k}) = \sum_{\substack{i=x,y,z \\ j=0,x,y,z}} k_i v_{ij} \sigma_j \quad (3.26)$$

und hat das Energiespektrum [70]

$$\epsilon_\pm = \sum_{i=x,y,z} k_i v_{i0} \pm \sqrt{\sum_{j=x,y,z} \left(\sum_{i=x,y,z} k_i v_{ij} \right)^2} = T(\mathbf{k}) \pm U(\mathbf{k}). \quad (3.27)$$

Graphisch macht man sich klar, dass T das kegelartige Spektrum kippt (Abbildung 3.16). Innerhalb der kleinen Phase ohne Energiefülle, aber mit magnetischer Ordnung, beobachtet man mit sinkendem t_σ eine stetige Verdrehung des Weyl-Kegels durch Verschieben der Energieniveaus bei L und Γ (siehe Abschnitt

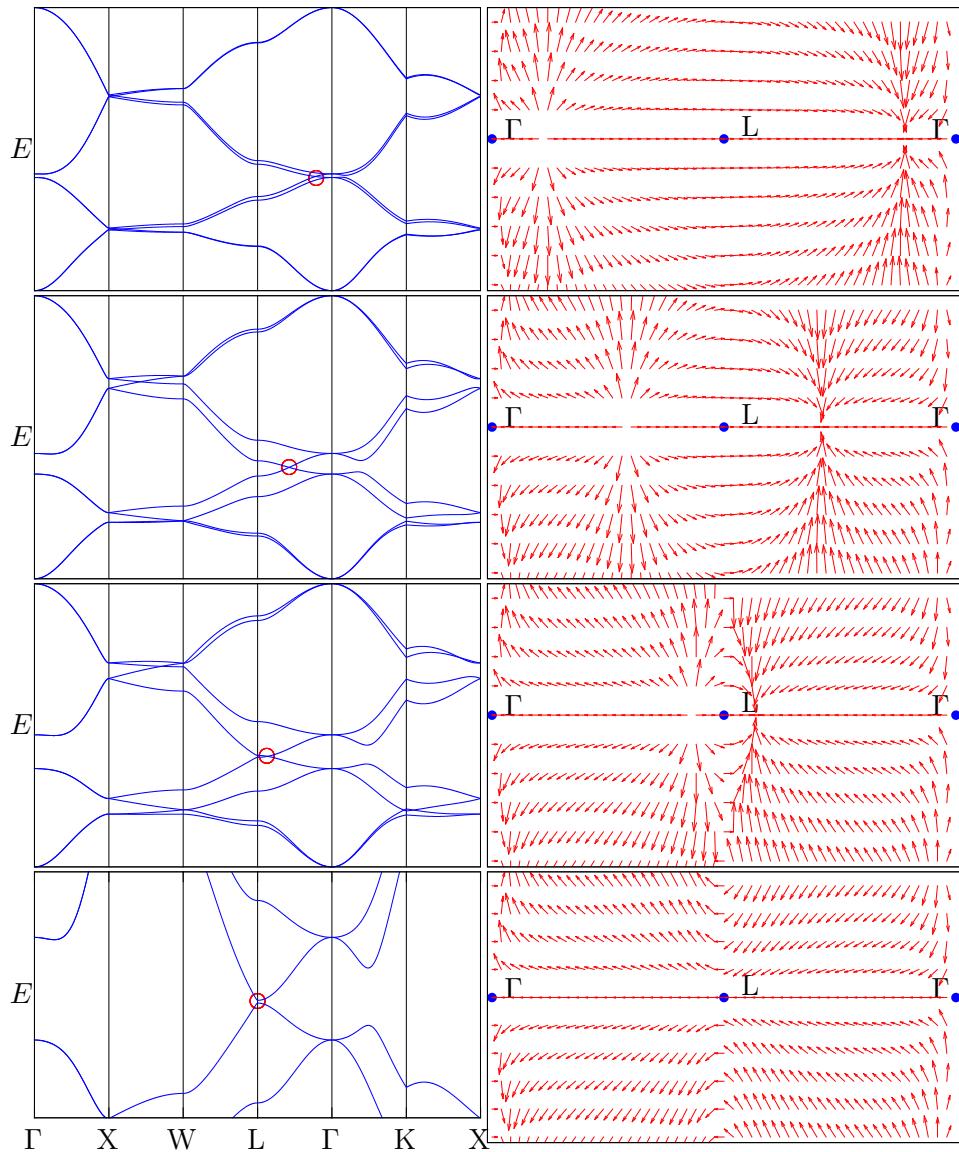


Abbildung 3.15: Annihilation der Weyl-Punkte für $t_\sigma = -1$. Von oben nach unten gilt für die Hubbardwechselwirkung $U = 1.04, 1.06, 1.075, 1.08$. Die Weyl-Punkte sind rot umkreist. In der letzten Zeile ist die Bandlücke bereits geöffnet. In den darüber liegenden Zeilen lässt sich rechts die Position des Weyl-Punktes erkennen. Sie sind die Quellen und Senken des Vektorfeldes des Berry-Flusses. In der letzten Zeile ist die Bandlücke geöffnet, das zugehörige Feld des Berry-Flusses quellenfrei.

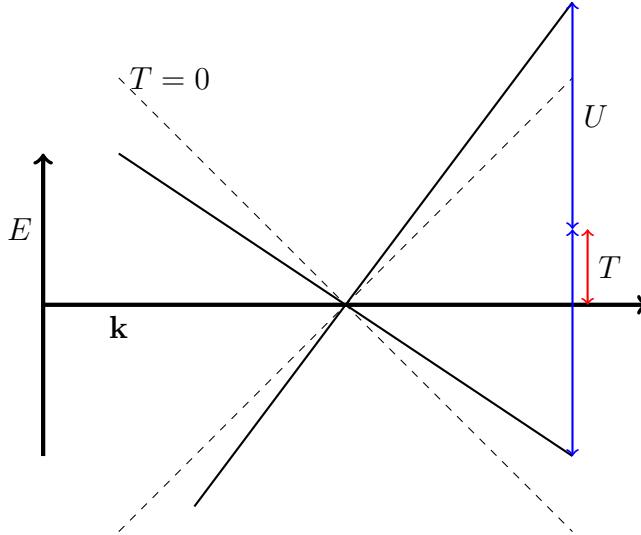


Abbildung 3.16: Das kegelförmige Spektrum verdreht sich für $T \neq 0$.

3.1.2). Dadurch ändert sich die chirale Ladung des Weyl-Punktes nicht. Man beachte, dass er jetzt nicht genau auf dem Niveau der Fermi-Energie liegt. Aus den Energieniveaus können die Werte T und U aus Gleichung (3.27) rekonstruiert werden. Abbildung 3.17 vergleicht diese für verschiedene Phasen und Richtungen im Impulsraum. Offenbar liegt für die betrachteten Abstände zum Weyl-Punkt tatsächlich ein lineares Spektrum vor. In der Weyl-Phase gilt stets $U > T$. Im magnetisch geordneten Metall hängt dies von der betrachteten Richtung ab. Für $\Delta\mathbf{k} = \delta(111)$ gilt $T > U$. Soluyanov *et al.* [70] nennen eine solche Phase Weyl-Semimetal vom Typ II. Im Gegensatz zur bisher betrachteten Weyl-Phase ist der Weyl-Punkt der Berührungs punkt von elektron- und lochartigen Fermi-Flächen. Des weiteren ist er mit den gewöhnlichen Fermi-Flächen, die um Γ entstanden sind, entartet. Die Drehung im Spektrum bricht die Lorentz-Invarianz der Weyl-Fermionen, deshalb werden diese Typ-II-Weyl-Fermionen ursprünglich nicht mit der Weyl-Gleichung beschrieben. In Festkörpern muss die Invarianz aber nicht gewährleistet werden und diese neue Art Weyl-Semimetalle ist möglich [70]. Es liegt nahe, den Begriff mAI-Phase fallen zu lassen, oder vielmehr – wie die folgende Diskussion zeigt – diese Phase weiter zu unterteilen.

Auch die Weyl-Punkte des Typ-II-Semimetalls können nur verschwinden, wenn sie mit Monopolen entgegengesetzter Chiralität annihielen. Dieses Verhalten ist in der oberen Zeile von Abbildung 3.18 zu sehen. Für $t_\sigma = -1.1$ und steigende Werte von U wandern die Berührungs punkte der elektron- und lochartigen Fermi-Flächen bis zum L-Punkt. Rechts ist zu sehen, dass der Weyl-Punkt zur Öffnung einer Bandlücke tatsächlich den L-Punkt erreichen muss. Die Abbildung zeigt die Situation kurz zuvor. Die resultierende Phase ist ein magnetisch geordnetes Metall mit elektron- und lochartigen Fermi-Flächen, die sich nicht länger berühren.

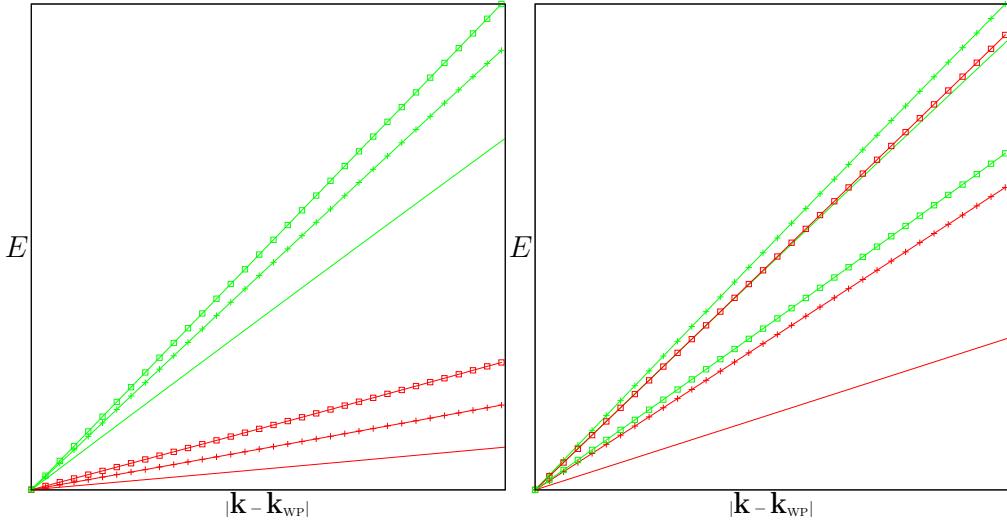


Abbildung 3.17: T und U aus (3.27) im Vergleich für verschiedene Phasen (links TWS, rechts mAI) und verschiedene Richtungen [einfache Linie:(100), Kreuz:(110), Quadrat:(111)]. Die Werte für U entsprechen den grünen Linien, die Werte für T den roten. In mAI-Phase in (111)-Richtung ist T größer als U.

Steigt die Wechselwirkungsstärke weiter an, verschwinden die Schnittflächen mit der Fermi-Energie und die isolierende AIAO-Phase wird erreicht.

Gleichzeitig beobachten wir neue Effekte (Abbildung 3.18). In Abschnitt 3.1.2 wurde bereits diskutiert, dass die Bandlücke zwischen besetzten und unbesetzten Bändern am L-Punkt kleiner wird. Das war der Grund für die Ausbildung der lochartigen Fermi-Flächen. Das kontinuierliche Schrumpfen der Bandlücke am L-Punkt und das Wandern der gekippten Weyl-Punkte von Γ nach L konkurrieren jetzt: Ist t_σ hinreichend klein, dann schließt die Bandlücke an L-Punkt, während die Weyl-Punkte sich noch zwischen Γ und L befinden. Dies ist in Abbildung 3.18 unten links zu sehen. Schließt die Bandlücke, entstehen acht neue Weyl-Punkte, ebenfalls zweiter Art, am L-Punkt, die energetisch niedriger als die bereits existierenden Weyl-Punkte liegen. Bei weiterer Erhöhung der Coulomb-Abstoßung bewegen sich die neuen Weyl-Punkte entlang der Linie ΓL den anderen Monopolen entgegen. Beide Verschmelzen zwischen L- und Γ -Punkt. In einem kleinen Bereich des Phasendiagramms existiert also ein Weyl-Semimetall vom Typ II mit 16 Weyl-Punkten. Nach Verschmelzung beider Punkte liegt zunächst wieder die mAI-Ordnung vor. Das weitere Verhalten ist analog zu oben.

Es erscheint also angebracht, die mAI-Phase im Phasendiagramm in Abbildung 3.1 durch die genauere Beschreibung in Abbildung 3.19 zu ersetzen. In [70] wird diskutiert, dass Weyl-Phasen vom Typ II sich in vielen Eigenschaften von der Standard-Weyl-Phase unterscheiden können. Weiteres Studium dieser Phase verspricht also interessante Ergebnisse.

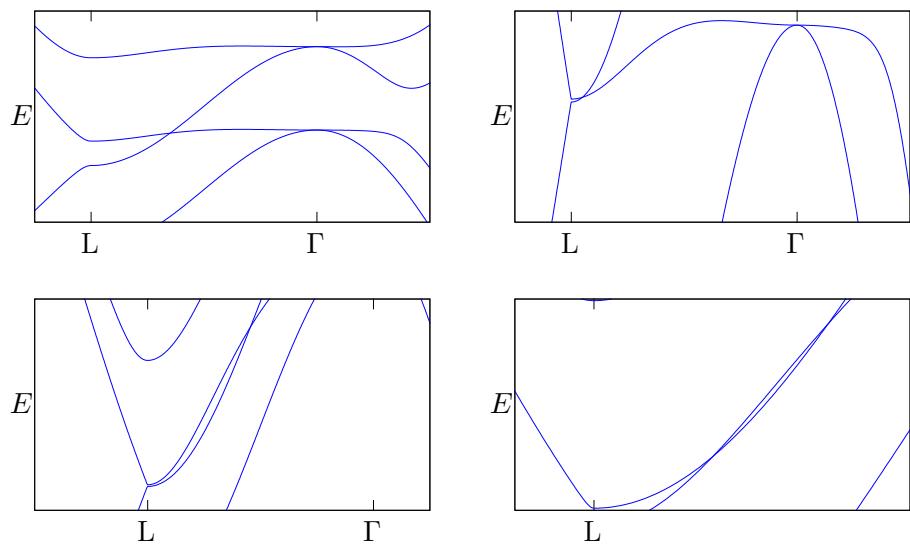


Abbildung 3.18: Zwei verschiedene Prozesse zur Annihilation der Weyl-Punkte.
 Für $t_\sigma = -1, 1$ (oben) müssen die Weyl-Punkte bis zum L-Punkt laufen. Für $t_\sigma = -1, 2$ schließt sich die Bandlücke schon vorher und es entstehen acht neue Weyl-Punkte.

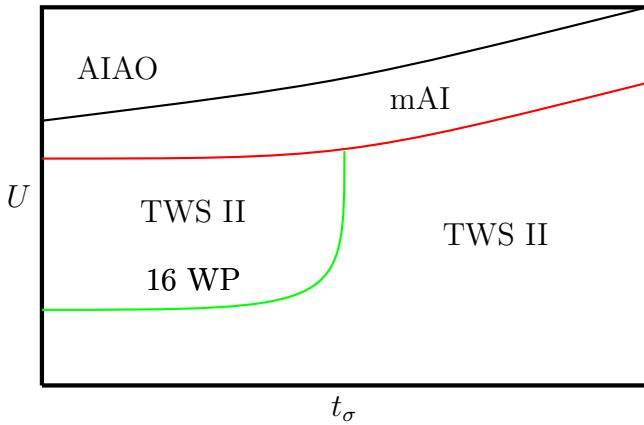


Abbildung 3.19: Schematisches Phasendiagramm, das die mAI-Phase ersetzt.
 Rote Linien signalisieren Lifshitz-Übergänge durch Annihilation zweier Weyl-Punkte, grüne Linien die Entstehung neuer Weyl-Punkte am L-Punkt. Die neuen Abkürzungen bedeuten: Topologisches Weyl-Semimetall vom Typ II (TWS II) und TWS II mit 16 Weyl-Punkten.

3.3 Oberflächenzustände des Weyl-Semimetalls

Die Diskussion des Weyl-Semimetalls soll mit einem Blick auf seine Oberflächenzustände komplettiert werden. Dazu werden Festkörper endlicher Ausdehnung betrachtet, die aus Schichten bestimmter Orientierung aufgebaut sind. Senkrecht zu den Schichten ist die Translationssymmetrie durch die endliche Ausdehnung gebrochen. Der Impulsanteil \mathbf{k}_\perp in dieser Richtung ist keine geeignete Quantenzahl. Die Ebenen selbst sind aber ins Unendliche ausgedehnt. Eine Fourier-Transformation bezüglich der Position in der Ebene, \mathbf{R}_\parallel , kann durchgeführt und die Zustände durch die Impulskomponente in der Ebene, \mathbf{k}_\parallel , abgezählt werden. Dazu definieren wir die Operatoren $c_{l\mathbf{k}_\parallel i\sigma}^\dagger$, die Fermionen mit Impuls \mathbf{k}_\parallel und Spin σ auf dem Untergitter i in der Schicht l erzeugen, über

$$c_{l\mathbf{R}_\parallel i\sigma}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N_A}} \sum_{\mathbf{k}_\parallel} e^{-i\mathbf{k}_\parallel \cdot \mathbf{R}_\parallel} c_{l\mathbf{k}_\parallel i\sigma}^\dagger. \quad (3.28)$$

N_A ist die Anzahl der Bravais-Gitterpunkte in der Schicht. Wir zählen die $c_{l\mathbf{k}_\parallel i\sigma}^\dagger$ gemäß der Reihenfolge $8l + n$ ab, wobei $n = 1, \dots, 8$ die Quantenzahlen ($i\sigma$) nummeriert. In Gleichung (2.31) wird die Summe über alle Bravais-Gitterpunkte in zwei Summen über die Schichten l und über die Position innerhalb der Schicht, \mathbf{R}_\parallel , aufgespalten. Man erhält

$$\begin{aligned} H &= \sum_l \sum_{\mathbf{R}_\parallel} \sum_j \sum_{\substack{j,i \\ j,i \\ j,i}} \sum_{\sigma\sigma'} c_{l'\mathbf{R}'_\parallel i\sigma}^\dagger h_{\sigma\sigma'}^{ij} c_{l\mathbf{R}_\parallel j\sigma'} \\ &= \frac{1}{N_A} \sum_l \sum_{\mathbf{R}_\parallel} \sum_{ij\sigma\sigma'} \sum_{\mathbf{k}_\parallel \mathbf{k}'_\parallel} e^{-i\mathbf{k}'_\parallel \cdot \mathbf{R}'_\parallel} e^{i\mathbf{k}_\parallel \cdot \mathbf{R}_\parallel} c_{l'\mathbf{k}'_\parallel i\sigma}^\dagger h_{\sigma\sigma'}^{ij} c_{l\mathbf{k}_\parallel j\sigma'} \\ &= \sum_{lij\sigma\sigma'} \sum_{\mathbf{q}_\parallel} e^{-i\mathbf{q}_\parallel \cdot \Delta\mathbf{R}_\parallel} c_{l'\mathbf{q}_\parallel i\sigma}^\dagger h_{\sigma\sigma'}^{ij} c_{l\mathbf{q}_\parallel j\sigma'}. \end{aligned} \quad (3.29)$$

Die Matrixelemente $h_{\sigma\sigma'}^{ij}$ sind die NN- oder NNN-Hüpfelemente. Die endliche Ausdehnung verbietet bestimmte Hüpfprozesse an den Randschichten. Die Summe über i berücksichtigt dies. Während j lediglich das Basisatom festlegt, steckt in i die zusätzliche Information über den Bravais-Gitterplatz. Die Schicht des Zielaatoms, l' , ist durch i, j und l eindeutig festgelegt. In der Fourier-Transformation sind die Vektoren \mathbf{b}_i diesmal nicht berücksichtigt. Von der zweiten zur dritten Zeile wurde die Summe über \mathbf{R}_\parallel ausgeführt, der verbleibende Impuls wurde \mathbf{q}_\parallel genannt. Es wurde $\mathbf{R}'_\parallel = \mathbf{R}_\parallel + \Delta\mathbf{R}_\parallel$ definiert. Die letzte Zeile kann kompakt als

$$H = \sum_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}}^\dagger \mathcal{H}(\mathbf{q}) c_{\mathbf{q}} \quad (3.30)$$

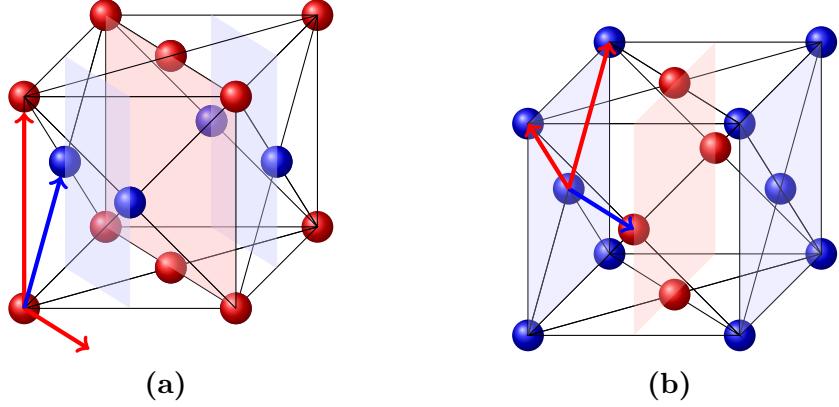


Abbildung 3.20: Einteilung des fcc-Gitters in Ebenen senkrecht zur (011)-Achse (a) und (001)-Achse (b). Rot eingezeichnete Vektoren spannen die Ebenen auf, der blaue Vektor zählt die Ebenen ab.

mit der $8W \times 8W$ -Matrix $h(\mathbf{q})$ und den Vektoren $c_{\mathbf{q}}^\dagger$ geschrieben werden. Die Anzahl der Schichten ist W . Die $8W$ Komponenten des Vektors $c_{\mathbf{q}}^\dagger$ werden durch die drei Quantenzahlen l , j , und σ abgezählt. Die Bandstruktur ergibt sich durch exakte Diagonalisierung von $\mathcal{H}(\mathbf{k})$. In Gleichung (3.29) müssen $\Delta\mathbf{R}_{\parallel}$ und l' aus l , j und i bestimmt werden.

3.3.1 Oberfläche senkrecht zur (011)-Richtung

Die betrachteten Schichten seien zunächst senkrecht zur (011)-Richtung orientiert. Die folgenden Schritte sind aber für beliebig orientierte Grenzflächen gleich. Wir konstruieren den Festkörper durch Stapeln von geeigneten Schichten. In einem ersten Schritt werden geeignete Linearkombinationen der Standard-Basisvektoren des fcc-Gitters gesucht, so dass zwei Vektoren des resultierenden Tripels eine Ebene senkrecht zur (011)-Richtung aufspannen und der dritte Vektor Punkte auf direkt übereinanderliegenden Ebenen verbindet. Abbildung 3.20(a) zeigt die Einteilung der Bravais-Gitterpunkte des fcc-Gitters in Ebenen senkrecht zur (011)-Richtung. Die blauen Vektoren spannen diese Ebenen auf. Der Vektor, der Punkte auf benachbarten Ebenen verbindet, ist rot markiert. Eine mögliche Wahl dieser Vektoren ist

$$\mathbf{t}_1 = \mathbf{a}_2 - \mathbf{a}_3 = (0, -2, 2), \quad (3.31)$$

$$\mathbf{t}_2 = \mathbf{a}_2 + \mathbf{a}_3 - \mathbf{a}_1 = (4, 0, 0), \quad (3.32)$$

$$\mathbf{s} = \mathbf{a}_3 = (2, 0, 2). \quad (3.33)$$

\mathbf{t}_1 und \mathbf{t}_2 spannen die Ebene auf. Die invertierten Gleichungen werden in Gleichung (1.21) eingesetzt, um ablesen zu können, wie sich der Bravais-Gitterpunkt

bei indirekten NN-Hüpfprozessen, ausgedrückt durch die neue Basis, ändert. Das Ausgangsatom i gehöre zu dem Bravais-Gitterpunkt mit den Koordinaten $\mathbf{R} = l\mathbf{s} + m\mathbf{t}_1 + n\mathbf{t}_2$. Für den zum Zielatom j gehörenden Bravais-Gitterpunkt ergibt sich

$$\begin{aligned}\mathbf{R}' = & (l + 2\delta_{1j} - 2\delta_{1i} + \delta_{2j} - \delta_{2i} + \delta_{3j} - \delta_{3i}) \mathbf{s} \\ & + (m + \delta_{1j} - \delta_{1i} + \delta_{2j} - \delta_{2i}) \mathbf{t}_1 + (n + \delta_{1j} - \delta_{1i}) \mathbf{t}_2.\end{aligned}\quad (3.34)$$

Man beachte, dass es offenbar möglich ist, durch indirektes NN-Hüpfen bis in die übernächste Schicht zu springen. Das ist konsistent mit der Beobachtung, dass bei (011)-Grenzflächen erst die dritte Schicht die volle Koordinationszahl hat. Aus Gleichung (3.34) können wir für bekanntes l , i und j direkt l' ablesen, es ist nichts anderes als der Koeffizient vor \mathbf{s} . Die Größe $\Delta\mathbf{R}_{\parallel}$ ist nicht durch den verbleibenden Teil der Gleichung gegeben, da \mathbf{s} nicht senkrecht auf \mathbf{t}_1 und \mathbf{t}_2 steht. Das ist für keine Wahl der Vektoren möglich, da Punkte auf benachbarten Ebenen nie direkt übereinander liegen [Abbildung 3.20(a)]. Projektion von \mathbf{s} in die durch \mathbf{t}_1 und \mathbf{t}_2 aufgespannte Ebene ergibt $\mathbf{s}_{\text{proj}} = (2, 1, -1)$. Damit ergibt sich

$$\begin{aligned}\Delta\mathbf{R}_{\parallel} = & (2\delta_{1j} - 2\delta_{1i} + \delta_{2j} - \delta_{2i} + \delta_{3j} - \delta_{3i}) \mathbf{s}_{\text{proj}} \\ & + (\delta_{1j} - \delta_{1i} + \delta_{2j} - \delta_{2i}) \mathbf{t}_1 + (\delta_{1j} - \delta_{1i}) \mathbf{t}_2.\end{aligned}\quad (3.35)$$

Wie in Abschnitt 1.2.4 wird diese Prozedur für direktes und indirektes Hüpfen zwischen übernächsten Nachbarn wiederholt und es ergeben sich Ausdrücke gleicher Form für l und $\Delta\mathbf{R}_{\parallel}$, in denen i , respektive j , durch den gemeinsamen nächsten Nachbarn c ersetzt werden. Direkte NN-Hüpfprozesse ändern das Tetraeder, und damit l und $\Delta\mathbf{R}_{\parallel}$ nicht. Alle Größen aus Gleichung (3.29) sind damit bekannt und wir können das Bandspektrum durch Diagonalisierung von $\mathcal{H}(\mathbf{q})$ bestimmen. Details zur Implementierung sind Anhang A.4 zu entnehmen.

Die Vektoren $(0, 1, -1)$ und $(1, 0, 0)$ spannen die Brillouin-Zone auf. Die Rechnung für den unendlich ausgedehnten Festkörper liefert die Mean-Field-Parameter, für die wir annehmen, dass sie sich für den endlichen Festkörper nicht ändern. Um den Verlauf der Fermi-Arcs zu bestimmen, werden die Schnittpunkte der Bänder mit dem chemischen Potential und die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der zugehörigen Elektronen in den einzelnen Schichten bestimmt. Auch das chemische Potential entnehmen wir der Berechnung für das unbegrenzte System. Hat das System topologische Eigenschaften, dann ändert der genaue Wert des chemischen Potentials nichts an der Existenz der Fermi-Arcs, sondern beeinflusst lediglich ihre Konnektivität und Form.

Abbildung 3.21 zeigt Spektrum und Fermi-Arcs für einen Festkörper, der aus

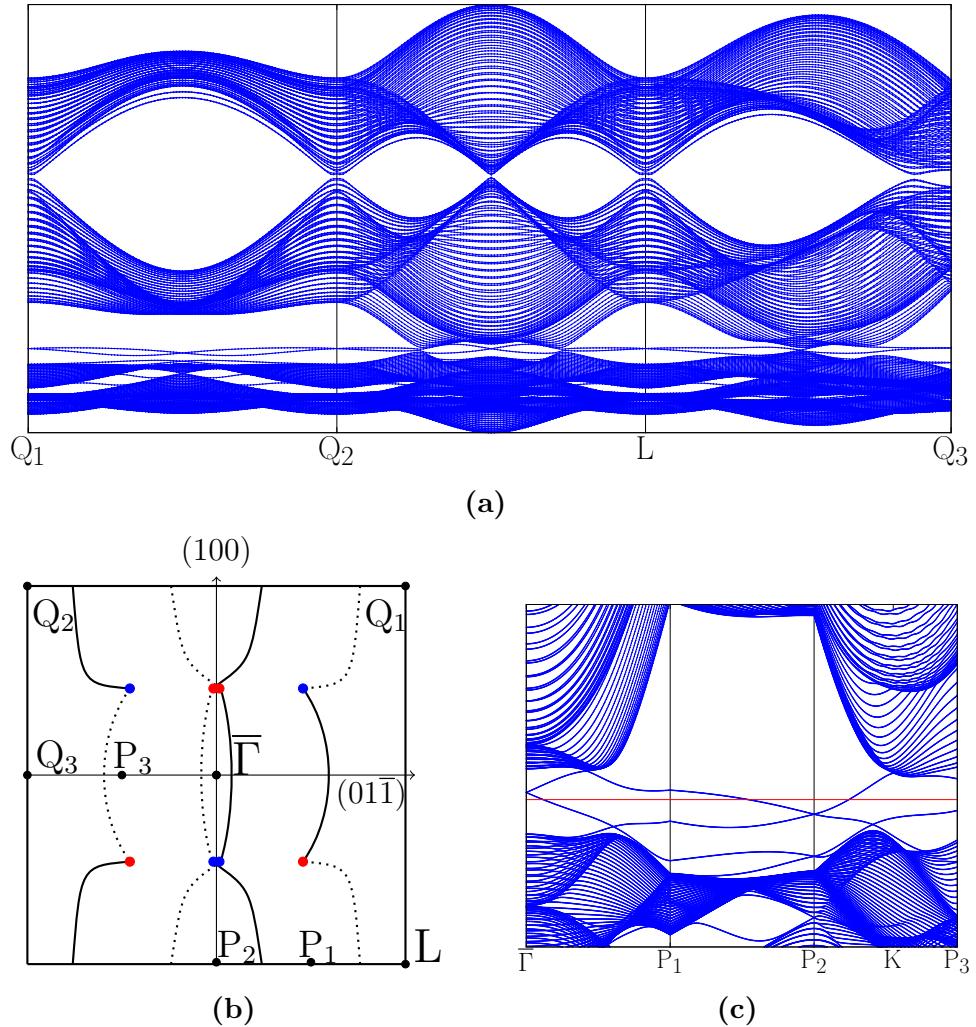


Abbildung 3.21: Spektrum und Fermi-Arcs für einen Festkörper, bestehend aus 60 Schichten in \$(01\bar{1})\$-Richtung für $t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.52$. (a) zeigt das Spektrum entlang der Linie $Q_1Q_2LQ_3$. (b) zeigt den Verlauf der Fermi-Arcs. Gestrichelte (durchgezogene) Linien repräsentieren Bögen auf der oberen (unteren) Oberfläche. Die Darstellung ist in $(01\bar{1})$ -Richtung gestaucht. Γ und L sind die Projektionen der Punkte aus der dreidimensionalen Brillouin-Zone. (c) erlaubt einen genaueren Blick auf die Oberflächenbänder und den Vergleich mit (b). Das chemische Potential ist rot eingezeichnet.

60 Schichten besteht, für die Parameterwahl $U = 1.52$ und $t_\sigma = -0.775$. Abbildung 3.21(b) zeigt die Oberflächen-Brillouin-Zone. Die Projektionen der Weyl-Punkte positiver (negativer) Chiralität auf diese Ebene sind in blau (rot) eingezeichnet. Weyl-Punkte mit Koordinaten $(\pm x, x, x)$ und $(\pm x, -x, -x)$ landen paarweise auf denselben Punkten $(\pm x, 0, 0)$. Sie sind in Abbildung 3.21(b) leicht versetzt von der (100) -Achse eingezeichnet, um erkennbar zu machen, dass zwei Weyl-Punkte gleicher Chiralität hier aufeinander liegen. Fermi-Arcs verbinden

die Weyl-Punkte unterschiedlicher Chiralität miteinander. Die Schnittpunkte von Oberflächenbändern, deren zugehörige Wellenfunktionen auf der Oberseite (Unterseite) des Festkörpers lokalisiert sind, ergeben die gepunkteten (durchgezogenen) Linien. Abbildung 3.21(a) zeigt alle 480 Bänder entlang der in Abbildung 3.21(b) eingezeichneten Punkte. In der Bandlücke zwischen besetzten und unbesetzten Bulk-Bändern sind Oberflächenbänder erkennbar. Die Energielücke zwischen den Bulk-Bändern wird kleiner, wenn man sich den Projektionen der Weyl-Punkte auf die Oberflächen-Brillouin-Zone nähert. Abbildung 3.21(c) zeigt nur die Bänder rund um das chemische Potential und erlaubt einen genaueren Blick auf die Oberflächenbänder. Das chemische Potential ist rot eingezeichnet. Der Schnittpunkt der Dispersionskurven mit dem chemischen Potential stimmt mit Abbildung 3.21(b) überein. Um zu überprüfen, ob der Name Oberflächenbänder für diese Dispersionskurven angebracht ist, wird die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der zugehörigen Elektronen in den verschiedenen Schichten berechnet. Die Operatoren $a_{n\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger}$, die Fermionen im Energieeigenzustand n mit dem Impuls \mathbf{k}_{\parallel} erzeugen, werden dafür durch die Erzeuger von Fermionen im Pseudospinzustand σ im Untergitter i am Bravais-Gitterpunkt \mathbf{R} ausgedrückt:

$$a_{n\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} = \sum_{\mathbf{R}} \sum_{i\sigma} A_{li\sigma}(\mathbf{k}_{\parallel}) \frac{1}{\sqrt{N_A}} e^{i\mathbf{k}_{\parallel}\mathbf{R}_{\parallel}} c_{\mathbf{R}i\sigma}^{\dagger}. \quad (3.36)$$

Dabei sind $A_{li\sigma}(\mathbf{k}_{\parallel})$ die Koeffizienten der Entwicklung der Energieeigenzustände nach den Eigenzuständen von Fermionen in Schicht l und Untergitter i mit Impuls \mathbf{k}_{\parallel} . Eine inverse Fourier-Transformation wurde durchgeführt. Die Wellenfunktion kann direkt abgelesen werden,

$$\psi_{n\mathbf{k}_{\parallel}}(\mathbf{R}, i\sigma) = \frac{1}{\sqrt{N_A}} A_{li\sigma}(\mathbf{k}_{\parallel}) e^{i\mathbf{k}_{\parallel}\mathbf{R}_{\parallel}}. \quad (3.37)$$

Offenbar ist das Bloch-Theorem für die Ebene, in der die Gitterperiodizität auch für den endlichen Festkörper erhalten geblieben ist, erfüllt. Die Wahrscheinlichkeit, ein Fermion mit Impuls \mathbf{k}_{\parallel} in Schicht l im Zustand $|i\sigma\rangle$ anzutreffen, ist proportional zur Größe $|A_{li\sigma}|^2$. Für feste Schicht l werden die $|A_{li\sigma}|^2$ aller Untergitter i und Spineinstellungen σ summiert. Die resultierende Größe misst die Aufenthaltswahrscheinlichkeit pro Schicht.

In Abbildung 3.22(a) ist diese Aufenthaltswahrscheinlichkeit für die Impulse Γ , P_1 und $K = (1 - 0.55)P_2 + 0.55P_2$ aus Abbildung 3.21(c) dargestellt. Das zum mittleren Oberflächenband gehörende Elektron bei P_1 (blau) ist auf der Oberseite des Festkörpers lokalisiert. Seine Aufenthaltswahrscheinlichkeit in tiefer liegenden Schichten verschwindet exponentiell, man kann es also mit Recht als Oberflächenband bezeichnen. Weiterhin betrachten wir den energetisch höchsten

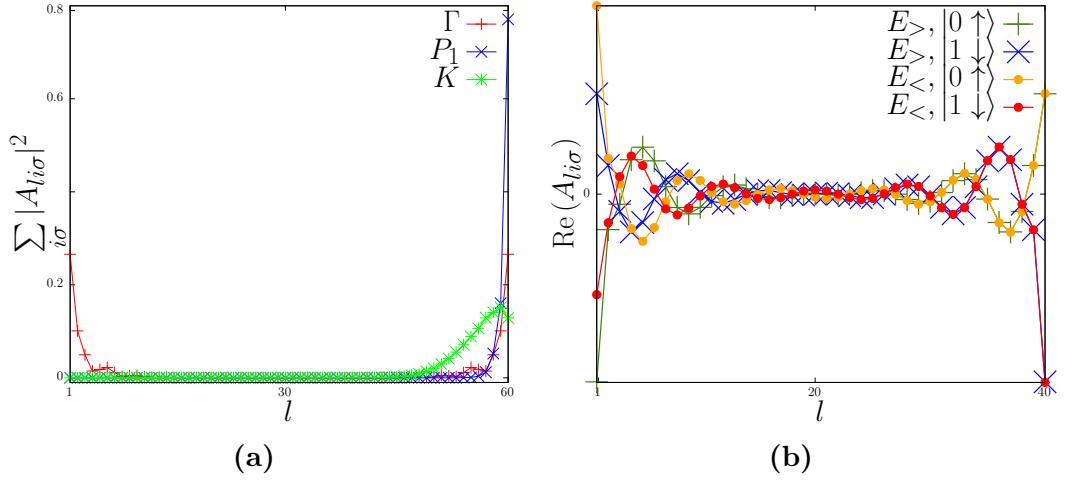


Abbildung 3.22: (a) Aufenthaltswahrscheinlichkeit pro Schicht für verschiedene Impulse aus Abbildung 3.21(c). (b) zeigt den Realteil der Wellenfunktion bei Γ , aufgelöst nach Untergitter und Spin für einen Festkörper aus 40 Schichten.

Oberflächenzustand bei K (grün). Abbildung 3.21(c) entnimmt man, dass sich das Oberflächenband bei K den unbesetzten Bulk-Bändern stark genähert hat. Dies resultiert in einer steigenden Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Fermions in tiefer liegenden Schichten. Nach Verschmelzung von Oberflächen- und Bulk-Bändern verliert ersteres seinen Randcharakter vollständig. Eine letzte Besonderheit bietet der Blick auf die Bänder bei Γ (rot), wo sich zwei Oberflächenbänder zu treffen scheinen. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit verschwindet auf keiner der Randflächen des Festkörpers. Auf Grund der endlichen Schichtanzahl gibt es eine Restkopplung zwischen Zuständen auf beiden Seiten. Dann kann wie bei der üblichen Behandlung vermiedener Niveaukreuzungen argumentiert werden. Die eigentlich entarteten Energien ϵ spalten in $\epsilon \pm \kappa$ auf und die korrekten Wellenfunktionen sind symmetrische und antisymmetrische Kombinationen der Wellenfunktionen, die auf nur einer Oberfläche lokalisiert sind. Tatsächlich erkennt man bei geeigneter Skalierung der Energieachse eine Bandlücke bei Γ . Diese verschwindet mit zunehmender Schichtdicke und simultan verschwindender Kopplung exponentiell. Weiterhin hängt die Aufspaltung vom Abstand des Impulses vom Weyl-Punkt ab. Mit sinkendem Abstand wächst die Bandlücke. Wir untersuchen die Wellenfunktionen genauer: Abbildung 3.22(b) zeigt die Realteile von $A_{l0\uparrow}$ und $A_{l1\downarrow}$ für die energetisch höhere ($E_>$) und niedrigere ($E_<$) Wellenfunktion der fast entarteten Niveaus bei Γ für einen Festkörper aus 40 Schichten. Tatsächlich sind die Wellenfunktionen symmetrische und antisymmetrische Kombinationen aus je auf einer Seite lokalisierten Zuständen. Man beachte, dass für die (Anti-)Symmetrisierung die Anteile von Elektronen im Untergitter 0 und Spin \uparrow mit dem Untergitter 1 und Spin \downarrow kombiniert werden müssen. Gleicher

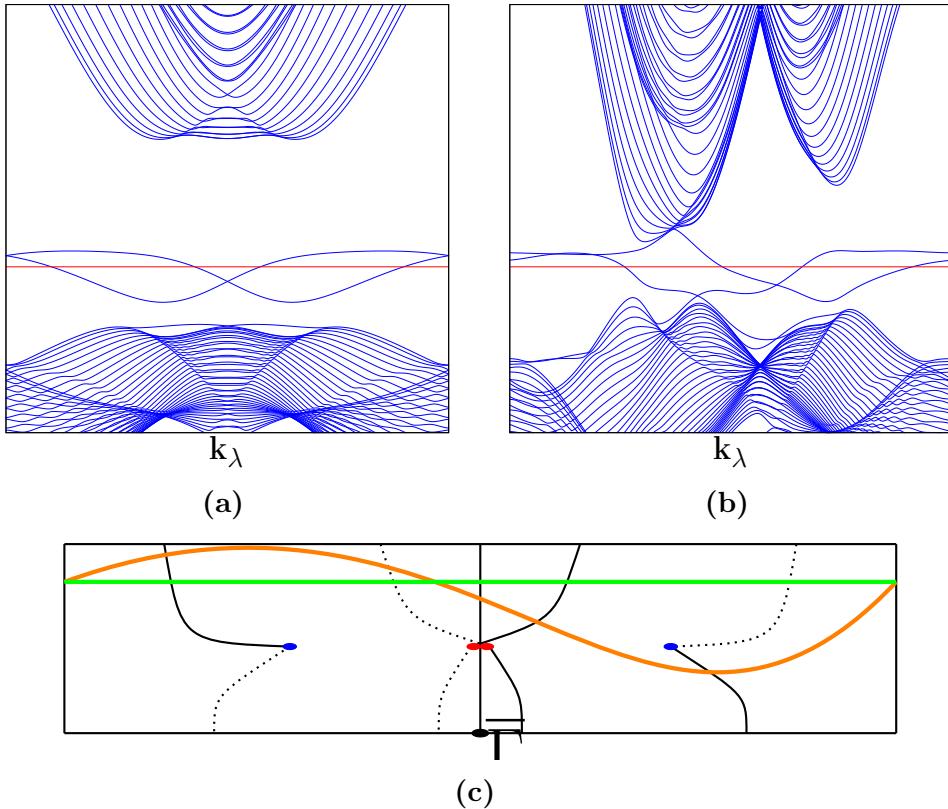


Abbildung 3.23: Ausschnitt des Spektrums für einen Festkörper mit Oberfläche senkrecht zur (011)-Richtung entlang der in (c) eingezeichneten Linien. (a) Für die grüne Linie findet man keine geschützten Randzustände. (b) Für die orangefarbene Linie ergibt sich das Spektrum eines Chernisolators.

findet man auch für die Untergitter 2 und 3. Die Symmetrieeoperation, die beide Grenzflächen austauscht, ist eine Drehung um π um die Achse $(1, 0, 0)$. Analog zu Abschnitt 2.1.1 zeigt man, dass dabei die Untergitter und Spins wie hier gefunden ausgetauscht werden. Anschaulich ist das klar: Einem auf dem Untergitter 0 in der ersten Schicht lokalisierten Elektron entspricht ein Elektron im Untergitter 1 auf der letzten Schicht. Da jede Schicht nur vollständige Tetraeder enthält, sind dies gerade die exponiertesten Gitterplätze.

Zwei Details der Fermi-Arcs aus Abbildung 3.21 seien noch erwähnt: Das zweite in Abschnitt 1.3.2 gegebene Argument zur Existenz der Fermi-Arcs konstruiert diese aus Schichten zweidimensionaler Systeme, die entweder topologisch trivial oder Chern-Isolatoren sind. Das ist auch hier möglich, allerdings müssen die zweidimensionalen Untersysteme dazu speziell gewählt werden. Alle Linien, die parallel zu einer der Ränder der Brillouin-Zone aus Abbildung 3.21(b) sind, sind die Ränder trivialer topologischer Isolatoren. Ein Beispiel ist die grüne Linie aus Abbildung 3.23(c). Der Verlauf der Oberflächenbänder entlang dieser Linie, dargestellt in Abbildung 3.23(a), ermöglicht es, die Bänder aus der Bandlücke zu schie-

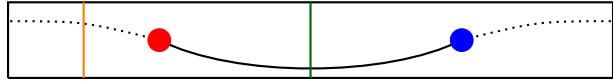


Abbildung 3.24: Verbotener Verlauf der Fermi-Arcs in einem einfachen System mit lediglich zwei Weyl-Punkten.

ben und die Schnittpunkte der Dispersionskurve mit den Oberflächenbändern zu eliminieren. Der Berry-Fluss durch das zweidimensionale System, dessen Rand die grüne Linie ist, verschwindet, weil eine gleiche Anzahl Weyl-Punkte positiver und negativer Chiralität auf jeder Seite liegt. Die Fermi-Arcs erscheinen als die topologisch geschützten Randzustände zweidimensionaler Systeme, wenn wir Ränder ähnlich zu der orangefarbenen Linie betrachten. Das zweidimensionale System, dessen Randzustand diese Linie ist, hat die Chern-Zahl eins, entsprechend finden wir in Abbildung 3.23(b) je einen topologisch geschützten Randzustand auf jeder Oberfläche des Systems. Abbildung 3.23(b) entnehmen wir weiterhin, dass die Anzahl der Schnittpunkte der Oberflächenbänder mit dem chemischen Potential durch Verformung der Dispersionskurve oder Verschieben des chemischen Potentials geändert werden kann. Nur ein solcher Schnittpunkt ist jedoch geschützt. Es folgt, dass die Konnektivität der Weyl-Punkte vom chemischen Potential abhängt. Läge dieses in Abbildung 3.23(b) wenig unterhalb des Niveaus des ersten unbesetzten Bulk-Bandes, dann würden die Oberflächenbänder das Potential nur zweimal schneiden. In Abbildung 3.23(c) muss sich dann die Konnektivität geändert haben, um zu gewährleisten, dass auch die orangefarbene Linie nur zwei Fermi-Arcs schneidet. Das chemische Potential für die Oberflächenfermionen kann in unserem Modell etwa durch Hinzufügen eines zusätzlichen on-site Potentials V in den obersten Schichten modelliert werden [71]. In Referenz [71] wird eine Änderung der Konnektivität von V beobachtet. Das ist auch hier zu erwarten.

Weiterhin können in Abbildung 3.21(b) Artefakte beobachtet werden, die in einfachen Modellsystemen mit zwei Weyl-Punkten nicht auftreten dürfen. Abbildung 3.24 zeigt die Oberflächen-Brillouin-Zone eines Modellsystems mit zwei Weyl-Punkten. Die gezeigte Konnektivität kann nicht auftreten. Um beide Fermi-Arcs topologisch zu schützen, müssten beide eingezeichneten Linien die Ränder von Chern-Isolatoren sein. Das verbietet das zweite Argument aus Abschnitt 1.3.2. Trotzdem finden wir diese Konnektivität in Abbildung 3.21(b) wieder. Es ist die Existenz weiterer Weyl-Punkte, die dieses paarweise Verbinden ermöglicht. Wie in Abbildung 3.23(a) zu sehen war, erlaubt die Existenz weiterer Fermi-Arcs entlang der in Abbildung 3.23(c) eingezeichneten grünen Linie, dass diese Linie der Rand eines trivialen zweidimensionalen Systems ist, obwohl sie vier Fermi-Arcs schneidet. Man findet also, dass die Existenz weiterer Weyl-Punkte auch die möglichen paarweisen Verbindungen zwischen zwei Weyl-Punkten beeinflusst.

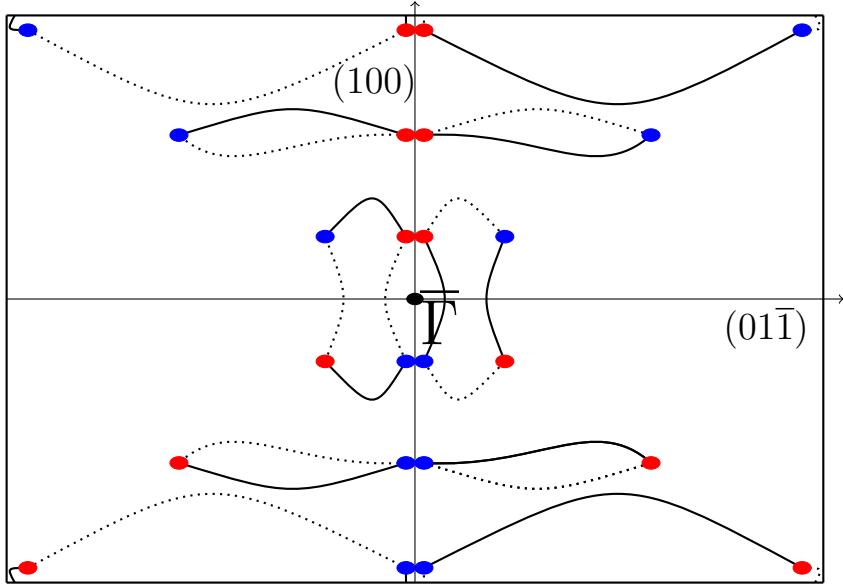


Abbildung 3.25: Entwicklung der Fermi-Arcs bei Änderung von U für $t_\sigma = -1$. Auf dem Weg von Γ zu den projizierten L -Punkten am Zonenrand ändert sich die Konnektivität der Weyl-Punkte. Von innen nach außen sind die Parameter $U = 1,04$, $U = 1,06$ und $U = 1,075$.

Wir wenden uns nun der Abhängigkeit der Konnektivität von der Position im Phasendiagramm zu. Hier wird der Fall $t_\sigma = -1$ bei variablem U diskutiert. Abbildung 3.25 zeigt die Fermi-Arcs – von innen nach außen – kurz nach der Entstehung nahe des Γ -Punktes ($U = 1.04$), tief in der Weyl-Phase ($U = 1.06$) und kurz vor der paarweisen Annihilation der Weyl-Punkte ($U = 1.075$). Die Konnektivität ändert sich in Abhängigkeit von U . Zwei auf der gleichen Oberfläche lokalisierte Fermi-Arcs verschmelzen und trennen sich unter Änderung der Konnektivität wieder. Ein Beispiel macht dies klarer: Für $U = 1.04$ sind die Fermi-Arcs auf der $(01\bar{1})$ -Achse bereits stark zueinander hin gekrümmmt. Mit steigendem U schmilzt der Abstand weiter, und Fermi-Arcs auf den gleichen Oberflächen verschmelzen und trennen sich wieder. Dabei entsteht die Konfiguration, die auch für $U = 1.06$ noch Bestand hat. Eine solche kontinuierliche Änderung der Konnektivitäten wird in Analogie zu Referenz [71] Weyl-Lifshitz-Übergang genannt. Dort kontrolliert das chemische Potential das Schließen und Neuöffnen der Fermi-Arcs, hier ist es die Hubbard-Wechselwirkung. Mit Änderung von t_σ lässt sich der gleiche Effekt erzielen. Kurz vor Annihilation der Weyl-Punkte ändert sich die Konnektivität erneut. Je zwei Fermi-Arcs auf der gleichen Oberfläche treffen sich am oberen Rand der Brillouin-Zone und verbinden sich neu. Die Fermi-Arcs verschwinden dann bei Annihilation der Weyl-Punkte auf zwei unterschiedliche Arten: Solche, die paarweise annihilerende Weyl-Punkte verbinden, schrumpfen auf die Länge null zusammen. Gemäß Abbildung 3.25 ist dies für die Hälfte der Fermi-Arcs auf

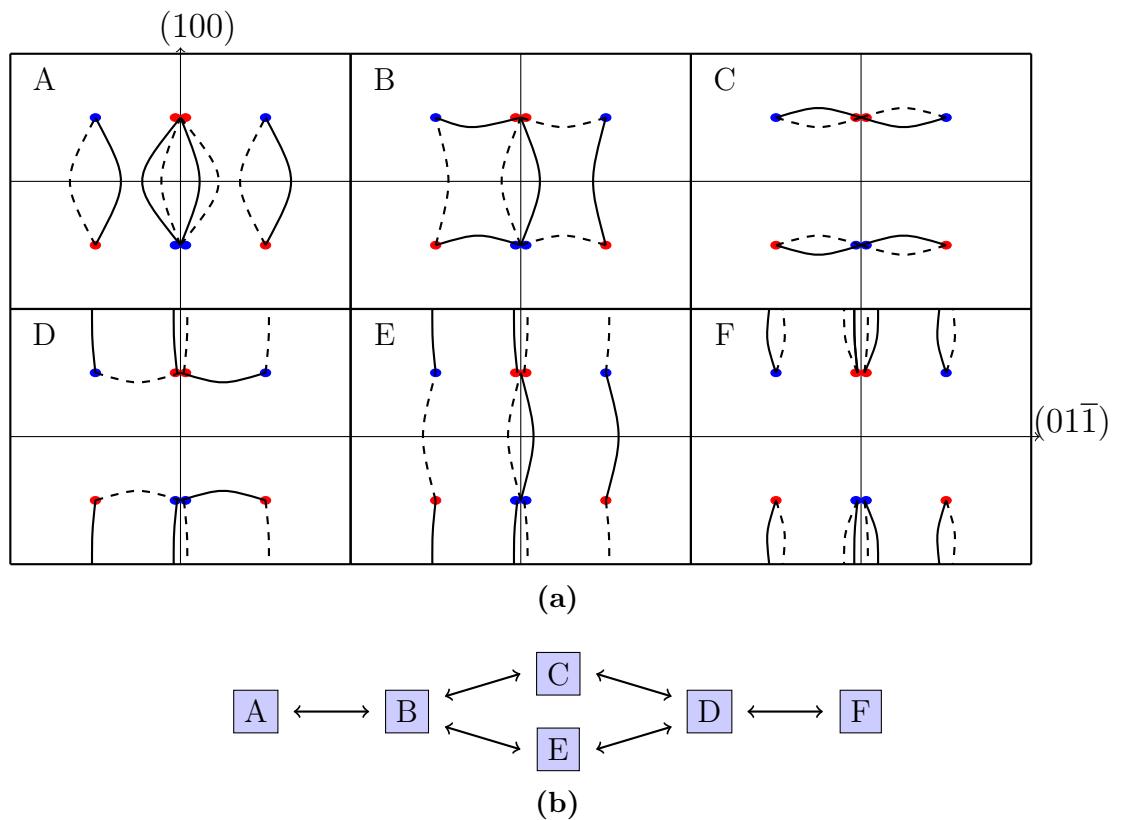


Abbildung 3.26: (a) Mögliche Verläufe der Fermi-Arcs in der Oberflächen-Brillouin-Zone. Vier dieser Verläufe wurden bereits gefunden. Die Zusammenhänge zwischen den Konnektivitäten sind in (b) dargestellt. Jeder Pfeil entspricht einem Weyl-Lifshitz-Übergang.

jeder Seite der Fall. Die verbleibenden Bögen – zwei auf jeder Seite – verbinden sich zu topologisch trivialen geschlossenen Fermi-Kurven, die einfach aus der Energielücke geschoben werden können.

Wir schließen diesen Abschnitt mit einigen weiteren Bemerkungen zu den unterschiedlichen Konnektivitäten. Die symmetrische Lage der Fermi-Arcs in der Brillouin-Zone folgt aus der Invarianz des Festkörpers unter entsprechenden Transformationen. Die Transformation $x \leftrightarrow -x$ lässt alle Fermi-Arcs invariant, Spiegelung an der $(01\bar{1})$ -Achse vertauscht hingegen die Oberflächen, auf denen die Fermi-Arcs verlaufen. Zur Erklärung begnügen wir uns mit der Beobachtung, dass bei den gefundenen Konnektivitäten nur diese Transformationseigenschaften erlaubte Verbindungen – an jedem Weyl-Punkt muss ein Fermi-Arc pro Oberfläche enden – ermöglicht. Man prüft das alles für die bisher gefundenen Fälle leicht nach. Mit dieser Einschränkung reduziert sich die Anzahl möglicher Konnektivitäten auf sechs. Diese sind in Abbildung 3.26(a) dargestellt. Sie unterscheiden sich jeweils durch die Topologie der Gesamtheit der Fermi-Arcs auf beiden Festkörperoberflächen. Für alle anderen potentiellen Verbindungen lassen

sich die Arcs nicht korrekt als Randzustände von Chern-Isolatoren interpretieren. Alle erlaubten Konnektivitäten lassen sich durch Weyl-Lifshitz-Übergänge ineinander überführen. Abbildung 3.26(b) zeigt, welche der Konfigurationen durch wie viele Weyl-Lifshitz-Übergänge getrennt sind. Man beachte, dass Anfangs- (A) und Endpunkt (F), sowie (C) die Konfigurationen sind, die die Weyl-Punkte paarweise verbinden. Alle anderen Verbindungen, insbesondere auch (E), benötigen die Existenz aller Weyl-Punkte, um erklärt werden zu können. Bis auf (A) und (F) wurden alle Konfigurationen bereits gefunden. Der naheliegende nächste Schritt wäre die Erstellung eines auf Abbildung 3.26(b) basierendes, verfeinertes Phasendiagramm der Weyl-Phase, insbesondere im Hinblick auf die Existenz von (A) und (F).

3.3.2 Oberfläche senkrecht zur (001)-Richtung

Für Schichten, aus denen wir durch Stapeln in (001)-Richtung einen endlichen Festkörper konstruieren, ist eine mögliche Aufteilung der Bravais-Gittervektoren durch

$$\mathbf{t}_1 = \mathbf{a}_2 - \mathbf{a}_1 = (2, -2, 0), \quad (3.38)$$

$$\mathbf{t}_2 = \mathbf{a}_3 = (2, 2, 0), \quad (3.39)$$

$$\mathbf{s} = \mathbf{a}_2 = (2, 0, 2) \quad (3.40)$$

gegeben. Wiederum spannen \mathbf{t}_1 und \mathbf{t}_2 die Schichten auf und verbindet \mathbf{s} benachbarte Schichten, so wie dies in Abbildung 3.20(b) zu sehen ist. Den Hamiltonoperator konstruiert man analog zum Festkörper mit Grenzflächen senkrecht zur (011)-Richtung. Die Projektion der Weyl-Punkte auf eine Ebene senkrecht zur (001)-Richtung bildet je zwei Weyl-Punkte entgegengesetzter Chiralität auf dieselben Koordinaten ab, nämlich jeweils $(\pm x, \pm x, x)$ und $(\pm x, \pm x, -x)$. Topologisch geschützte Randzustände erwarten wir deshalb nicht.

Die Oberflächen-Brillouin-Zone wird von den beiden Vektoren $(1, -1, 0)$ und $(1, 1, 0)$ aufgespannt. Abbildung 3.27 zeigt den Verlauf der Fermi-Kurven durch die Brillouin-Zone und einen Ausschnitt des Spektrums. In 3.27(a) sind die projizierten Weyl-Punkte grün markiert. Jeweils zwei Weyl-Punkte entgegengesetzter Chiralität liegen übereinander, deswegen ist der Verlauf der Fermi-Kurven auf Ober- (blau) und Unterseite (rot) topologisch auch trivial. Die Fermi-Kurven der Oberflächenbänder sind nicht einmal mit den projizierten Weyl-Punkten verknüpft. Wie beim Verlauf der Fermi-Kurven des starken topologischen Isolators beobachtet man auch hier, dass Ober- und Unterseite durch Rotation um $\pi/2$ ineinander übergehen. Es gibt keine topologisch geschützten Randzustände.

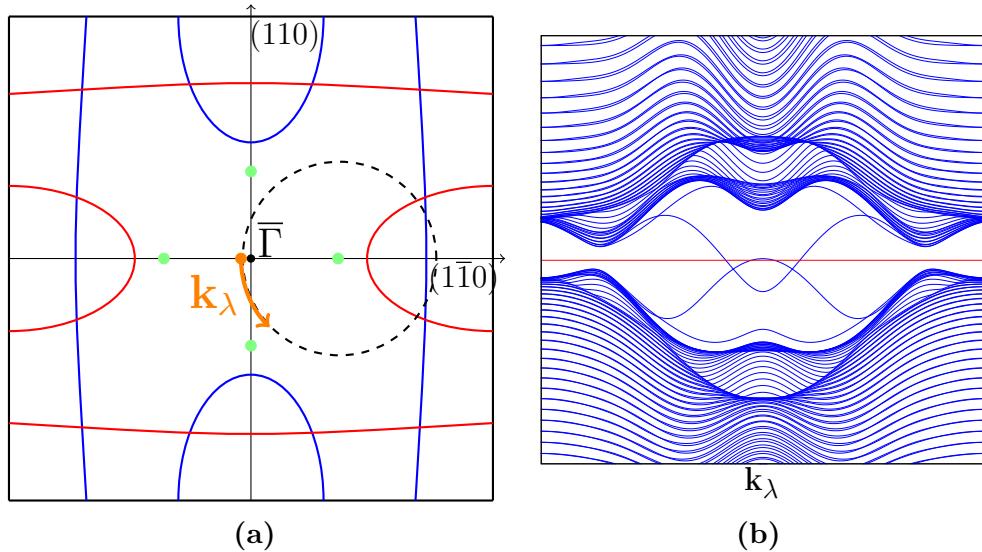


Abbildung 3.27: (a) Brillouin-Zone und Fermi-Kurven für einen Festkörper mit Oberflächen senkrecht zur (001)-Richtung. Die Weyl-Punkte werden paarweise auf die grünen Punkte projiziert. (b) Ausschnitt des Spektrums entlang k_λ . Die auftauchenden Oberflächenbänder gehören zu Zuständen, die auf entgegengesetzten Seiten des Festkörpers lokalisiert sind. Keines der Oberflächenbänder hat den für Chern-Isolatoren zu erwartenden Verlauf.

Exemplarisch betrachten wir das Spektrum entlang des gestrichelten Kreises in Abbildung 3.27(a). Dieser schließt die Projektionen zweier Weyl-Punkte entgegengesetzter Chiralität ein und ist deshalb der Randzustand eines trivialen Isolators. Entsprechend beobachten wir im Spektrum in Abbildung 3.27(b) zwar Oberflächendispersionskurven, die aber topologisch nicht geschützt sind, da sie nicht zwischen unbesetzten und besetzten Bulk-Bändern verlaufen.

3.3.3 Bemerkungen

Bisher haben wir nur Schichten aus vollständigen Tetraedern betrachtet. Obere und untere Grenzschicht sind in (011)-Richtung äquivalent. Die Konstruktion eines Festkörpers mit unterschiedlichen Grenzflächen ist möglich, etwa durch Weglassen der Atome auf Position 1 auf den Tetraedern der obersten Grenzschicht. Das zweidimensionale Gitter auf der Oberfläche enthielt dann doppelt so viele Atome (die Positionen 2 und 3) wie die Unterfläche (Position 0). Für die verschiedenen Kombinationen möglicher Grenzflächen oben und unten erwartet man ebenfalls veränderte Konnektivitäten, in Übereinstimmung mit [72], [48] und [71]. Insbesondere könnten sich unterschiedliche Verläufe für Fermi-Arcs auf Ober- und Unterseite ergeben, so dass die Anzahl der Einschränkungen für mögliche Konnektivitäten kleiner wäre. Eine nähere Untersuchung wert wäre auch

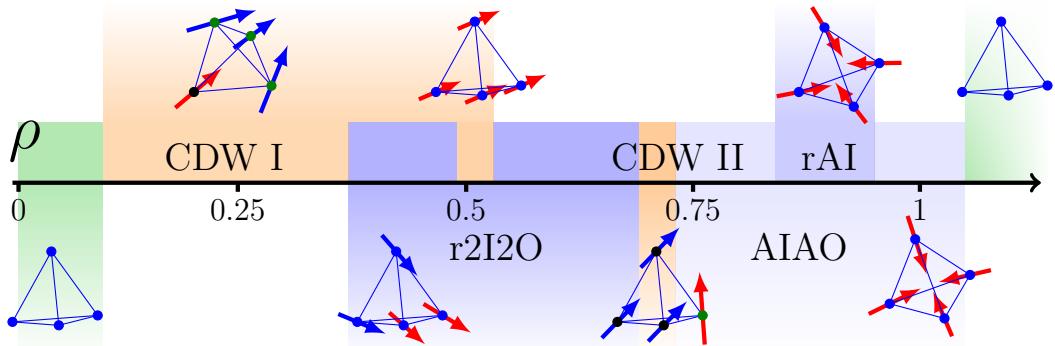


Abbildung 3.28: Phasendiagramm für $t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.56$ in Abhängigkeit von der Elektronendichte. Phasen mit Ladungsdichtewelle (CDW) sind orangefarben hinterlegt, Phasen ohne CDW, aber mit magnetischer Ordnung, blau und Phasen ohne Ordnung und CDW grün.

die Auswirkung der fehlenden Symmetrietransformation, die beide Oberflächen vertauscht, auf die Form der Wellenfunktionen. Ebenfalls interessant ist der Fall für Festkörper mit Orientierung in (111)-Richtung. Dort können Oberflächen entweder aus Kagomé- oder Dreiecksgittern zusammengesetzt sein. Die dreizählige Rotationssymmetrie um die (111)-Achse schränkt in diesem Fall – analog zu oben – die Konnektivitäten ein. Dort gibt es drei Möglichkeiten (pro Oberfläche) [71].

3.4 Magnetische Ordnung und Dotierung

Die bisher präsentierten Resultate basieren auf der Annahme, dass die $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Mannigfaltigkeit genau halb besetzt ist ($\rho = 1$). Diese Annahme wird nun fallen gelassen. Beliebige Elektronendichten zwischen $\rho = 0$ und $\rho = 2$ (zwei Elektronen pro Gitterplatz) können durch geeignete Wahl des chemischen Potentials in Gleichung (2.57) realisiert werden. Experimentell kann die Dichte durch Dotierung kontrolliert werden, anstelle von $\text{Y}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ betrachtet man zum Beispiel $\text{Y}_{2-x}\text{Ca}_x\text{Ir}_2\text{O}_7$ und kontrolliert über den Kalziumanteil die Anzahl der Elektronen [73]. Im folgenden werden die numerischen Ergebnisse für die Berechnung von 16 Mean-Field-Parametern präsentiert.

3.4.1 Phasendiagramm für $t_\sigma = -0.775$

Zunächst wird das in Abbildung 3.28 dargestellte Phasendiagramm für die Parameterkonfiguration $U = 1.56$ und $t_\sigma = -0.775$ diskutiert. Man findet neue Phasen, jenseits von AIAO- oder rAI-Ordnung. Alle konkreten Zahlenangaben gelten für $U = 1.56$ und $t_\sigma = -0.775$.

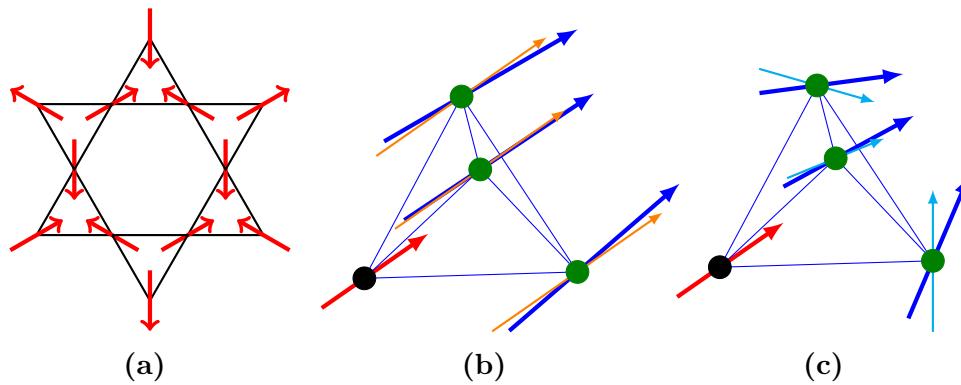


Abbildung 3.29: Magnetische Ordnung für niedrige Dichten. (a) Die Komponenten in der Ebene der Kagomé-Gitter haben eine zweidimensionale AIAO-Ordnung. (b) Für Dichten in der Nähe von $\rho = 0.36$ gilt in Gleichung (3.41) $a \approx c$ und alle Momente (blaue Vektoren) zeigen näherungsweise in (111)-Richtung (orangefarbene Vektoren). Gitterplätze mit niedriger Besetzungszahl sind schwarz, stärker besetzte grün. (c) Sinkt die Dichte, rotieren die Spins in Richtung der lokalen Koordinatenachsen (hellblau).

Ladungsdichtewellen bei niedrigen Dichten

Für $\rho < 0.08$ gibt es keine magnetische Ordnung und die Erwartungswerte aller magnetischen Momente verschwinden. Wird dieser Wert überschritten setzt kontinuierlich eine magnetische Ordnung ein. Der Zustand mit der niedrigsten freien Energie ist eine Ladungsdichtewelle. Man findet diese Konfiguration bis zu einer Dichte von $\rho \approx 0.366$. Die numerischen Resultate für die Momente haben die Form

$$\mathbf{S}_0 = (b, b, b), \quad \mathbf{S}_1 = (c, a, a), \quad \mathbf{S}_2 = (a, c, a), \quad \mathbf{S}_3 = (a, a, c). \quad (3.41)$$

Es gilt $\langle n_0 \rangle < \langle n_1 \rangle = \langle n_2 \rangle = \langle n_3 \rangle$. In der Sichtweise des Pyrochlorditters als alternierende Stapelung von Kagomé- und Dreiecksgittern ist die Ordnung am verständlichsten. In (111)-Richtung werden die Kagomé-Gitter von den Tetraederecken 1, 2 und 3 gebildet. An den Punkten des Dreieckgitters (0) zeigt der Spin weiterhin in Richtung des Tetraederzentrums. Damit steht er senkrecht auf das Dreiecksgitter. Werden die magnetischen Momente an den Eckpunkten 1, 2 und 3 in die Ebene des Kagomé-Gitters projiziert, dann ergibt sich die zweidimensionale AIAO-Ordnung aus Abbildung 3.29(a). Wenn am Gitterplatz 0 der Spin zum Tetraedermittelpunkt zeigt, dann zeigen die Spins zum Mittelpunkt des Dreiecks hin. Der Charakter der Ordnung ändert sich für unterschiedliche Dichten. Für $\rho = 0.33$ gilt $a/c \approx 0.81$ und die magnetischen Momente weichen nur wenig von der (111)-Richtung ab [Abbildung 3.29(b)]. Für sinkende Dichte

fällt die Größe a/c , etwa auf 0.288 für $\rho = 0.1$. Der Anteil des magnetischen Moments in der Kagomé-Gitterebene wächst. Die Spins auf dem Kagomé-Gitter orientieren sich für sehr niedrige Dichten in Richtung der globalen Koordinatenachsen und stehen untereinander senkrecht [Abbildung 3.29(c)]. Unabhängig vom Verhältnis a/c gibt es stets ein resultierendes magnetisches Moment in (111)-Richtung. Welchen Tetraedereckpunkt die numerische Rechnung auszeichnet, so wie hier 0, hängt von den Startwerten ab. Es gibt für jeden Eckpunkt entsprechende Lösungen mit AIAO-Konfiguration. Aus Symmetriegründen erwarten wir diese vierfache Entartung (ohne Berücksichtigung von $\mathbf{S} \leftrightarrow -\mathbf{S}$).

Die gleiche Ordnung finden wir erneut für $\rho \approx 0.5$. Hier ist der Unterschied zwischen den Größen a , b und c , sowie den Besetzungszahlen allerdings sehr klein, z.B. $a/c \approx 0.97$, so dass beinahe ein kollinearer Ferromagnet in eine der zur (111)-Richtung äquivalenten Richtungen vorliegt. Eine Ordnung mit drei gleich besetzten Gitterplätzen wird – ohne nähere Details – in [58] erwähnt.

r2I2O-Ordnung bei mittleren Dichten

Für mittlere Dichten ($0.366 \lesssim \rho \lesssim 0.673$) ergibt sich – außer im Bereich $\rho \approx 0.5$ – für die Erwartungswerte der Spins

$$\mathbf{S}_0 = (a, a, b), \quad \mathbf{S}_1 = (-a, a, b), \quad \mathbf{S}_2 = (a, -a, b), \quad \mathbf{S}_3 = (-a, -a, b). \quad (3.42)$$

Die Elektronen besetzen die Tetraederecken gleichmäßig. Diese Konfiguration unterscheidet sich von der rAI-Ordnung aus Gleichung (3.11) nur durch die Vorzeichen von \mathbf{S}_1 und \mathbf{S}_2 . Entsprechend erhält man die Orientierung der Spins durch die gleichen paarweisen Drehungen einer Ausgangskonfiguration, in der zwei Momente zum Tetraedermittelpunkt hin und zwei davon weg zeigen. Deshalb nennt man diese Konfiguration *rotated two-in-two-out*-Ordnung (r2I2O). Analog zur rAI-Ordnung ist diese Konfiguration sechsfach entartet. Die Drehungen erfolgen in den bekannten Ebenen [Abbildung 3.30(a)]. Bei der Drehung vergrößert (verkleinert) sich der Winkel, den nach innen (außen) zeigende Momente einschließen. Das magnetische Gesamtmoment zeigt in Richtung einer der Koordinatenachsen. Die Komponenten senkrecht zu dieser Richtung heben sich paarweise auf [Abbildung 3.30(b)]. In Gleichung (3.42) gilt immer $|b| \gg |a|$, z.B. $a/b = -0.058$ für $\rho = 0.4$. Die r2I2O-Ordnung ist also ebenfalls beinahe ein kollinearer Ferromagnet. Man beachte, dass die bisher gefundenen neuen Ordnungen stets ein magnetisches Gesamtmoment aufweisen, im Gegensatz zur Diskussion in [67]. Shinaoka *et al.* [13] finden in $A_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ verschiedene Ferromagneten als energetisch günstigste Zustände und erklären diese mit einer verallgemeinerten Variante von Gleichung (3.12), die zusätzliche, anisotrope, ferromagnetische Ordnun-

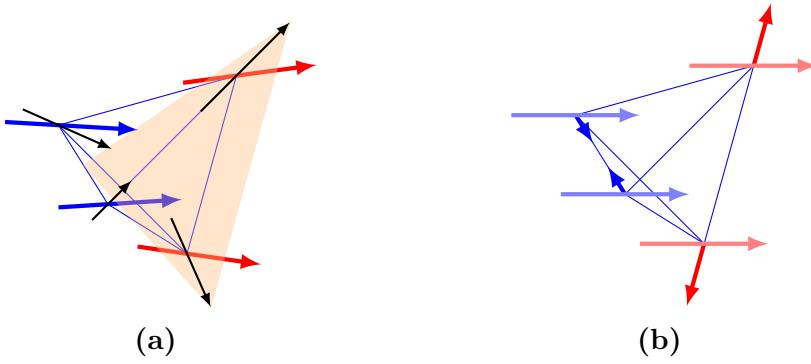


Abbildung 3.30: Magnetische Konfiguration für mittlere Dichten. (a) Die blauen (roten) Momente resultieren aus der paarweisen Drehung von Spins in der rAI -Ordnung (schwarz). Die Drehung vergrößer (verkleinert) den eingeschlossenen Winkel. (b) Aufteilung der Momente in eine Komponente parallel zum resultierenden Gesamtmoment und senkrecht dazu. Die Momente an den Eckpunkten zeigen paarweise aufeinander zu (voneinander weg).

gen präferierende Terme enthält. Eine ähnliche Rechnung wäre auch hier sinnvoll. Ausführlich werden anisotrope magnetische Wechselwirkungen auf Grund der starken Spin-Bahn-Kopplung für Elektronen der t_{2g} -Mannigfaltigkeit in [74] diskutiert.

Hohe Dichten – AIAO-Ordnung und verwandte Phasen

Für hohe Dichten ($\rho > 0.735$) sind die Gitterplätze gleichmäßig besetzt. Die Spins gehen – wie bei der rAI-Konfiguration – durch paarweise Rotationen aus der AIAO-Konfiguration hervor. Diese Konfigurationen sind deshalb auf die gleiche Weise entartet. Der Drehwinkel ist jedoch kleiner als bei der rAI-Ordnung. Betrachtet werde ein Tetraeder, dessen Momente nach innen zeigen. Paarweises Drehen der Momente kann diese entweder antiparallel in Richtung der Verbindungsachse (Vergrößerung des Winkels) oder parallel und senkrecht zur Verbindungsachse (Verkleinerung) ausrichten. Beide Möglichkeiten sind in Abbildung 3.31 dargestellt. Für verschiedene Dichten variieren die Drehwinkel leicht. Die so überstrichenen Winkelbereiche sind in 3.31 rot hinterlegt. Man findet, dass für $\rho > 0.956$ und $\rho < 0.848$ die AIAO-Ordnung die selbstkonsistente Lösung mit der niedrigsten freien Energie ist. In dem Zwischenbereich sind die Spins für $\rho > 0.909$ so gedreht, dass sich der Winkel vergrößert. Für $\rho < 0.909$ verkleinert er sich dagegen. In der Nähe der Übergänge koexistieren mehrere lokale Minimia und für die freie Energie ergeben sich Verläufe wie in Abbildung 3.6(a). Die Übergänge sind erster Ordnung. Der Betrag des magnetischen Moments ändert sich bei Wechsel der Ordnung kaum. Extremfälle der hier beschriebenen Konfigurationen wären ei-

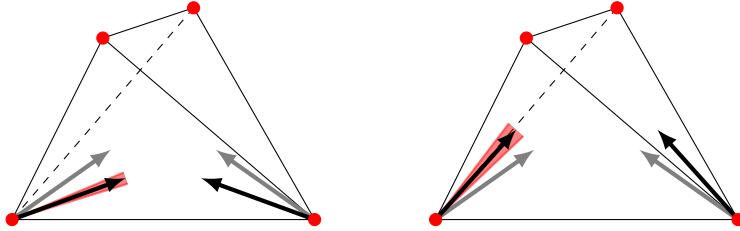


Abbildung 3.31: Ordnung für hohe Dichten. Grau eingezeichnet sind zwei Spins der AIAO-Konfiguration. Die Drehung kann die Spins entweder antiparallel ausrichten (links) oder parallel (rechts).

nerseits eine planare AIAO-Ordnung, bei der auf gegenüberliegenden Tetraederkanten je zwei Spins antiparallel entlang dieser Kante zeigen, und andererseits eine 2-up-2-down-Ordnung. Beide werden in [13] diskutiert.

Ladungsdichtewelle

Zwischen der r2I2O-Ordnung und der AIAO-Ordnung ist die Lösung kleinster freier Energie erneut eine Ladungsdichtewelle. Diese lässt sich nicht so einfach aus einer anschaulichen Ordnung, wie AIAO- oder 2I2O-Ordnung konstruieren, wie die bisher gefundenen Konfigurationen. Die genauen Orientierungen der magnetischen Momente hängen von den mikroskopischen Details ab. Charakteristisch für diese Ordnung ist, dass es einen stark besetzten Gitterplatz gibt sowie ein Paar Tetraederecken mit der gleichen Besetzungszahl. Die Anzahl der Elektronen auf dem verbleibenden Tetraederpunkt variiert mit den mikroskopischen Parametern. So findet man zum Beispiel in Abhängigkeit von der NNN-Wechselwirkung zwei Paare fast gleich besetzter Tetraederecken ($t'_i = 0$) oder drei fast gleich besetzte Ecken ($t'_i = 0.08t_i$). Wir betrachten die Tetraederkante, die die gleich besetzten Ecken verbindet. Die Momente an den anderen Eckpunkten stehen senkrecht auf dieser Achse. Die Momente an den gleichbesetzten Tetraederecken gehen durch Spiegelung an der Ebene, die die gegenüberliegende Tetraederkante und den Mittelpunkt ihrer Verbindungsachse enthält, ineinander über. In Abbildung 3.28 ist die Ordnung für $t'_i = 0.08t_i$ dargestellt.

Bemerkungen

Für $\rho < 1$ vergrößert sich der Bereich im (t_σ, U) -Phasendiagramm, in dem magnetische Ordnung auftritt, und bereits für kleinere Hubbard-Wechselwirkungen wird die Zeitumkehrsymmetrie gebrochen. Abbildung 3.32 stellt die lokale Polarisation pro Gitterplatz dar. Die einzelnen Datenpunkte entstammen dabei Minimierungen der freien Energie für vorgegebene AIAO-Ordnung. Diese ist, wie diskutiert, nicht überall im dargestellten Intervall die selbstkonsistente Lösung kleinster frei-

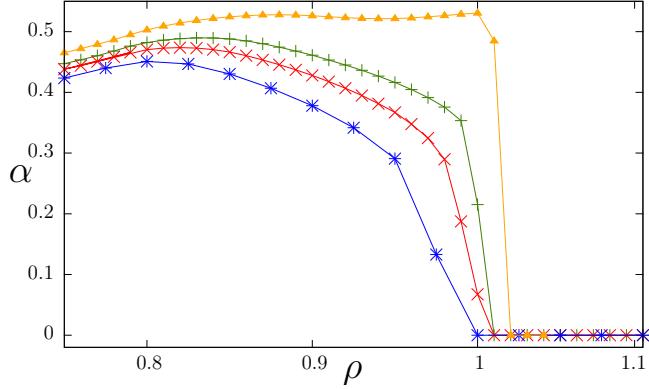


Abbildung 3.32: Lokale Polarisation für verschiedene Werte der Hubbard-Wechselwirkung und $t_\sigma = -0.775$ (blau: $U = 1.45$, rot: $U = 1.52$, grün: $U = 1.56$, gelb: $U = 1.62$)

er Energie. Der Verlauf der Kurve bleibt aber gleich, wenn die richtigen Konfigurationen eingesetzt werden. Man findet stets ein Maximum bei einer Dichte $\rho < 1$. In Abbildung 3.32 gehören grüne und rote Kurve zu Punkten aus der Weyl-Semimetallphase. Für kleinere Werte der Coulomb-Abstoßung verschiebt sich die Kurve nach links, behält aber ihren Verlauf. Deshalb finden wir bei kleineren Dichten auch für Werte von U , in denen bisher keine Ordnung gefunden wurde, zeitumkehrsymmetriebrechende Phasen, in der Abbildung etwa für $U = 1.45$ (blaue Kurve). Das Resultat gilt auch für Hubbard-Wechselwirkungen deutlich unterhalb der bisher betrachteten Werte, zum Beispiel tritt für $U = 0.9$ bei einer Dichte von $\rho \approx 0.873$ eine AIAO-Ordnung auf, die bei $\rho \approx 0.75$ in die Ladungsdichtewelle übergeht. Die Magnetisierung verschwindet für Dichten $\rho > 1$ schnell. Dabei zeigt sich ein qualitativ unterschiedliches Verhalten in Abhängigkeit davon, ob $\rho = 1$ einer semimetallischen oder isolierenden Phase entspricht. Im zweiten Fall verschwindet die Polarisation unstetig, so wie in Abbildung 3.32 die orangefarbene Kurve. Im Isolator müssen zusätzliche Elektronen energetisch sehr viel höher liegende Zustände besetzen als in der metallischen Phase. Das kann erklären, weshalb die Polarisation so schnell verschwindet. Die für kleine Dichten ansteigende Polarisation hat u.a. zur Folge, dass die Weyl-Punkte – sofern bei $\rho = 1$ vorhanden – mit sinkender Dichte annihilieren, allerdings oberhalb des Fermi-Levels, da die Bänder nicht länger halb gefüllt sind.

3.4.2 Vergleich der Bandstrukturen

Für $t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.56$ werden in Abbildung 3.33 die Bandstrukturen der minimalen AIAO-Konfiguration (linke Spalte) mit den Bandstrukturen der gefundenen Ordnungen (rechte Spalte) verglichen, um die Entstehung neuer Phasen plausibler zu machen. Von oben nach unten entsprechen die Zeilen $\rho = 0.6$,

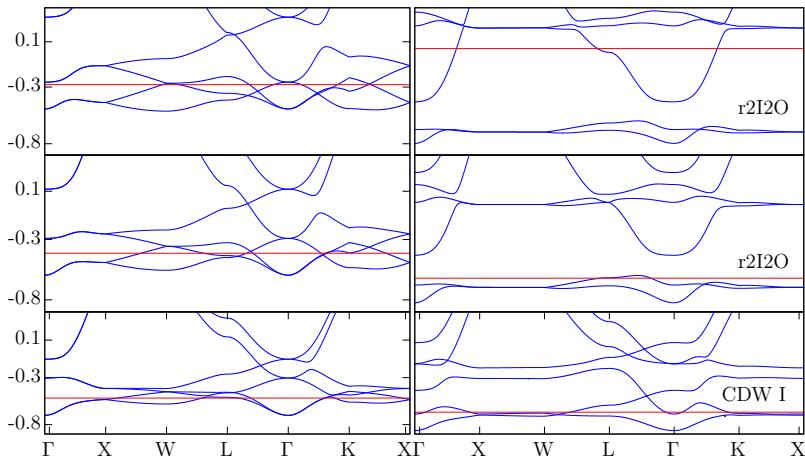


Abbildung 3.33: Bandstrukturen für die gefundenen Ordnungen (rechte Spalte) im Vergleich zu den Bandstrukturen der AIAO-Konfiguration minimaler freier Energie (links). Von oben nach unten gilt $\rho = 0.6$, $\rho = 0.45$ und $\rho = 0.3$. Die Hartree-Verschiebung ist in den Energien enthalten. Das chemische Potential ist rot eingezeichnet.

0.45 und 0.3. Der konstante Hartree-Term wurde in die Energien absorbiert, um den direkten Vergleich der Spalten zu ermöglichen.

In den r2I2O-Konfigurationen sind die höchsten besetzten Zustände für $\rho = 0.6$ energetisch ungünstiger als in der AIAO-Konfiguration. Dieser Effekt konkurriert mit dem Energiegewinn durch Absenken der beiden niedrigsten Bänder. Wenn letzterer dominiert, ist die r2I2O-Konfiguration favorisiert. Für $\rho = 0.45$ und $\rho = 0.3$ liegen die relevanten Bänder in den neu gefundenen Phasen deutlich unterhalb der Bänder der AIAO-Konfiguration. Eine Besonderheit der Bandstruktur der Ladungsdichtewelle bei niedrigen Dichten sei noch erwähnt. Das zweite und dritte Band kreuzen sich linear auf der Linie ΓL . Es gibt nur zwei solcher Kreuzungspunkte, weil die Symmetrien, die in der AIAO-Ordnung die Weyl-Punkte aufeinander abgebildet haben, hier gebrochen sind. Die magnetische Ordnung zeichnet eine zu (111)-äquivalente Richtung aus. Auf der entsprechenden Linie im \mathbf{k} -Raum liegen die beiden Kreuzungspunkte. Für $\rho = 0.5$ ist dieser Kreuzungspunkt immer noch vorhanden. Hier scheint also eine Weyl-Phase mit lediglich zwei Weyl-Punkten vorzuliegen. Der energetische Unterschied zwischen dieser Ordnung und der r2I2O-Ordnung, die ebenfalls selbstkonsistente Lösung ist, ist sehr gering. Anhand der Bandstruktur können also die unterschiedlichen Konfigurationen plausibel gemacht werden. In vorherigen Kapiteln wurde bereits beobachtet, dass sich die Bandstruktur bei Variation von t_σ stark verformt. Man vergleiche etwa die Bandstrukturen für $t_\sigma = -0.775$ für verschiedene Werte von U in Abbildung 3.15 mit der Bandstruktur für $t_\sigma = -1.2$ aus der linken Spalte von Abbildung 3.4. Für festes t_σ und verschiedene Werte von U findet man bei

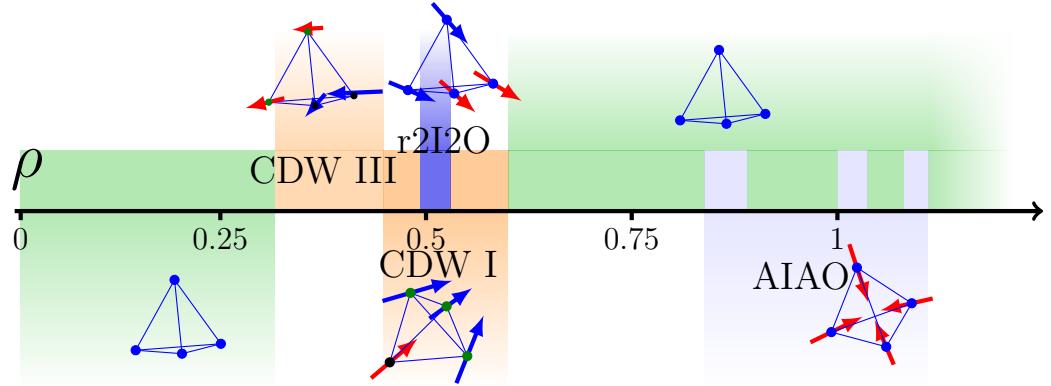


Abbildung 3.34: Phasendiagramm für $t_\sigma = -1$ und $U = 1.055$. Im Vergleich zu Abbildung 3.28 existiert eine neue Ladungsdichtewelle für kleine Dichten.

Variation der Dichte immer die gleichen Phasen. Im Gegensatz dazu hängen die gefundenen Phasen stark von t_σ ab. Das Phasendiagramm für $t_\sigma = -1$ macht dies deutlich.

3.4.3 Phasendiagramm für $t_\sigma = -1$

Das Phasendiagramm für $t_\sigma = -1$ ist in Abbildung 3.34 dargestellt. Im Vergleich zu Abbildung 3.28 verschwindet die magnetische Ordnung in einem sehr viel größeren Bereich. Die Ladungsdichtewelle, die für niedrige Dichten die freie Energie minimiert, tritt auch hier auf, allerdings bei höheren Dichten. Zudem ist diesmal das Dreiecksgitter stärker besetzt. Auch die r2I2O-Ordnung finden wir erneut. Für kleine Dichten schließt sich eine neue Art Ladungsdichtewelle (CDW III) an, die im folgendem Unterabschnitt diskutiert wird. Durch Vergleich der Bandstrukturen macht man sich auch diese Ordnungen plausibel. Wie oben diskutiert, unterscheiden sich die Bandstrukturen deutlich voneinander, zum Beispiel existieren die flachen unteren Bänder aus Abbildung 3.33 nicht, und der große Unterschied der beiden Phasendiagramme überrascht nicht.

Ladungsdichtewelle für kleine Dichten

In der neuen Ladungsdichtewelle (CDW III) gibt es zwei stark und zwei schwach besetzte Tetraederpunkte. Die magnetischen Momente haben die Form

$$\mathbf{S}_0 = (0, -a, -a), \quad \mathbf{S}_1 = (0, -a, a), \quad \mathbf{S}_2 = (-c, -b, b), \quad \mathbf{S}_3 = (c, -b, b). \quad (3.43)$$

Diese Ordnung ist in Abbildung 3.35 gezeigt. Die Gitterplätze 0 und 1 sind schwächer besetzt als 2 und 3. Die magnetischen Momente bei 0 und 1 zeigen parallel zur Tetraederkante, die 2 und 3 verbindet. Die Momente an den

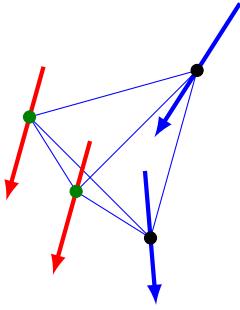


Abbildung 3.35: Neue Ladungsdichtewelle für niedrige Dichten und $t_\sigma = -1$. Je zwei Gitterplätze sind gleich besetzt. Das resultierende magnetische Gesamtmoment zeigt parallel zur Tetraederkante, die stärker besetzte Gitterplätze verbindet.

stärker besetzten Gitterplätzen haben zusätzlich noch eine kleine Komponente senkrecht zu dieser Achse, die in Richtung des gegenüberliegenden Tetraedermittelpunktes zeigt. Diese Komponenten heben sich genau weg. Das resultierende Gesamtmoment zeigt damit ebenfalls parallel zur Verbindungslinie der stärker besetzten Tetraederecken in eine zur (110)-Richtung äquivalenten Richtung. Ohne Berücksichtigung der Entartung $\mathbf{S} \leftrightarrow -\mathbf{S}$ ist diese Konfiguration sechsfach entartet, da neben der Wahlfreiheit der Eckpunktpaare ein zusätzlicher Freiheitsgrad aus den unterschiedlichen Besetzungszahlen resultiert. Auch ein Ferromagnet in (110)-Richtungen wird in [13] untersucht.

3.5 Ladungsdichtewellen

Im Folgenden werden Ladungsdichtewellen und deren Auswirkungen auf die Weyl-Semimetal-Phase untersucht. Die ersten Überlegungen zu Ladungsdichtewellen in Festkörpern gehen zurück auf Peierls [75]. Sein Argument ist am einfachsten für eindimensionale Metalle verständlich. Abbildung 3.36(a) zeigt die Dispersionsrelation eines solchen Metalls. Die Elektronen besetzen das Band bis zur Fermi-Energie. Die Elektronen an der Fermi-Kante haben den Fermi-Impuls $\pm k_F$. Eine periodische Modulierung der Dichte oder des Spins mit der Wellenlänge $\lambda = \pi/k_F$, so wie in Abbildung 3.36(b) oben dargestellt, verkleinert die Brillouin-Zone so, dass die Fermi-Impulse an den Rändern der Brillouin-Zone liegen. In diesem Fall ist ein Öffnen des zurückgefalteten Bandes an den Rändern der Brillouin-Zone möglich. Wie in Abbildung 3.36(b) zu sehen ist, können die höchsten besetzten Zustände ihre Energie senken, ohne dass sich die Erhöhung des oberen Bandes energetisch ungünstig auswirkt. Das Argument gilt nur für Bandlücken, die beim Fermi-Impuls entstehen. Genauer argumentiert man mit der Lindhard-Funktion [77], die die Neuanordnung der Ladungen des Systems als

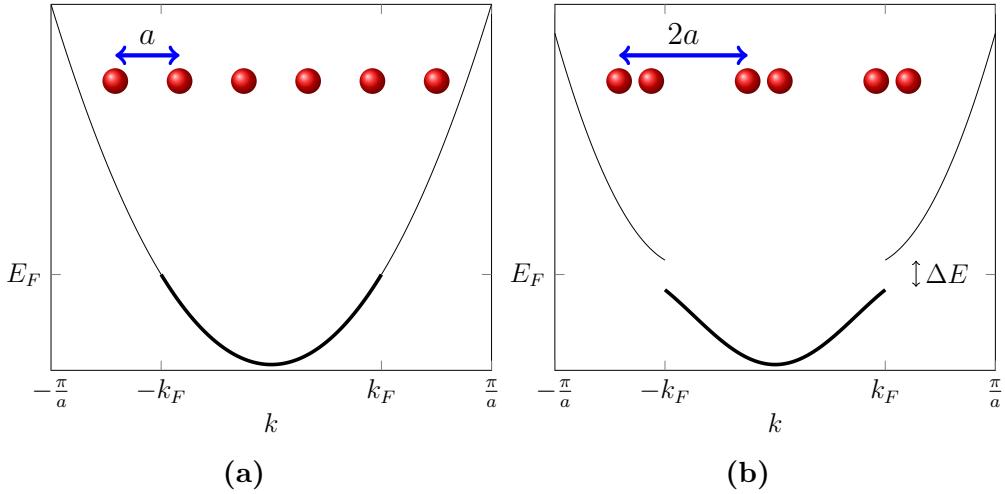


Abbildung 3.36: (a) Dispersionsrelation eines eindimensionalen Metalls. (b) Nach Ausbildung von Ladungsdichtewellen kann die Energie durch Öffnen einer Bandlücke gesenkt werden, wenn der Fermi-Impuls an der Grenze der neuen Brillouin-Zone liegt. Abbildung nach [76].

Reaktion auf eine äußere Störung beschreibt. Für das eindimensionale Elektronengas divergiert diese Funktion wegen der Beiträge von entarteten Zuständen mit $\Delta k = 2k_F$, von denen einer besetzt und der andere unbesetzt ist. Man spricht von perfektem *Nesting*, weil alle Zustände an der Fermi-Kante durch denselben Impuls verbunden sind. Das Elektronengas selbst ist instabil gegenüber der Ausbildung einer Spin- oder Ladungsdichtewelle. Die Anzahl der Zustände mit $\Delta k = 2k_F$ sinkt in höheren Dimensionen und führt zum Verschwinden der Singularität der Suszeptibilität oder Lindhard-Funktion. Wenn es parallele Teilstücke der Fermi-Fläche gibt, so dass viele Zustände gleicher Energie durch Verschiebung um den gleichen Vektor \mathbf{q} ineinander übergehen, kann auch in höheren Dimensionen die Nesting-Bedingung gut erfüllt sein. Bekanntestes Beispiel ist das zweidimensionale Hubbard-Modell, dessen Fermi-Fläche bei halber Füllung quadratisch ist, so dass je zwei gegenüberliegende Seiten durch einen Impulsvektor verbunden sind. Der Grundzustand ordnet deshalb antiferromagnetisch.

In dem hier betrachteten Modell besteht die Fermi-Fläche aus den acht Weyl-Punkten. Die beste Nesting-Bedingung liegt in (001)-Richtung vor. Je vier Weyl-Punkte entgegengesetzter Chiralität sind durch den gleichen Impuls $(0, 0, 2x)$ verbunden, wobei $\pm x$ die Impulskomponenten der Weyl-Punkte sind. Existieren Modulationen der Dichte mit geeigneter Wellenlänge, dann liegen in der zurückgefalteten Brillouin-Zone Weyl-Punkte unterschiedlicher Chiralität nahe beieinander und können unter Öffnen einer Bandlücke annihilieren. In (111)-Richtung gibt es nur je einen Weyl-Punkt positiver und negativer Chiralität, die bei Ausbildung einer entsprechenden Dichtewelle nahe beieinander landen können. In (011)-

Richtung gibt es kein Nesting. Deshalb werden Ladungsdichtewellen (CDW) in (001)- und (111)-Richtung untersucht. Allgemein wird eine beliebige Ladungsdichtewelle eine zum Gitter inkommensurable Wellenlänge haben. Im Rahmen des hier betrachteten Modells können solche Wellen nicht beschrieben werden, da die möglichen Periode durch Wahl einer geeigneten Einheitszelle festgelegt wird. Wir lassen im Folgenden Einheitszellen zu, die n Bravais-Gitterpunkte enthalten, also $4n$ Basisatome, und untersuchen, ob Ladungsdichtewellen dazu führen können, dass sich die Mean-Field-Parameter gegenüber der AIAO-Konfiguration so ändern, dass nahe beieinander gelegene Weyl-Punkte genau aufeinander geschoben werden und annihilieren. Untersuchungen zu Ladungsdichtewellen in Weyl-Semimetallen finden sich in [78] und [79]. Referenz [80] findet mittels Methoden der Renormierungsgruppentheorie Spindichtewellen als führende Instabilität in einem einfachen Modellsystem mit zwei Weyl-Punkten. In Referenz [78] werden Ladungsdichtewellen als natürliche Konsequenz chiraler Symmetriebrechung diskutiert. Referenz [79] untersucht ein Weyl-Semimetal auf einem einfach kubischen Gitter mit gebrochener Zeitumkehrsymmetrie und Hubbard-Wechselwirkung. Der oben beschriebene Fall des Öffnens einer Bandlücke durch Annihilation von Weyl-Punkten in der durch Ladungsdichtewellen verkleinerten Brillouin-Zone wird dort für *attraktive* Hubbard-Wechselwirkung diskutiert. In Abhängigkeit der Systemparameter finden sich zudem – ebenfalls für attraktive Wechselwirkungen – Ladungsdichtewellen innerhalb der Weyl-Semimetal-Phase, also ohne paarweise Annihilation der Weyl-Punkte. Im dem folgendem Abschnitt werden die Modifizierungen des Hamiltonoperators und der Methoden diskutiert, die durchgeführt werden müssen, um Ladungsdichtewellen auf dem Pyrochlordgitter zuzulassen.

Da nur eine lokale Coulomb-Abstoßung betrachtet wird, bleibt die Blockform des Wechselwirkungsanteils des Hamiltonoperators aus Gleichung (2.47) erhalten und es ergibt sich eine $8n \times 8n$ -Matrix mit $4n$ strukturell gleichen 2×2 -Matrizen auf der Diagonalen. Die Möglichkeit von Modulation der Mean-Field-Parameter, insbesondere der Teilchenzahlen, auf den *alten* Bravais-Gitterpunkten vervielfacht die Anzahl der Mean-Field-Parameter um den Faktor n , so dass jetzt $16n - 1$ Mean-Field-Parameter selbstkonsistent berechnet werden müssen. Die Teilchendichte fixiert den letzten Parameter. Die Struktur der Selbstkonsistenzgleichungen bleibt erhalten. Die Energieeigenwerte sind Superpositionen der an $4n$ Untergittern lokalisierten Zustände der $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Untermannigfaltigkeit. Die auftretenden Summen laufen also über $8n$ Bänder. In den Gleichung (2.54) und den folgenden Gleichungen ändert sich N , die Anzahl der Bravais-Gitterpunkte. Der Integrationsbereich ist ein zur neuen Brillouin-Zone äquivalentes Parallelepiped. Für den Anteil des Hamiltonoperators, der die Hüpfprozesse beschreibt, ist die Situation etwas komplizierter.

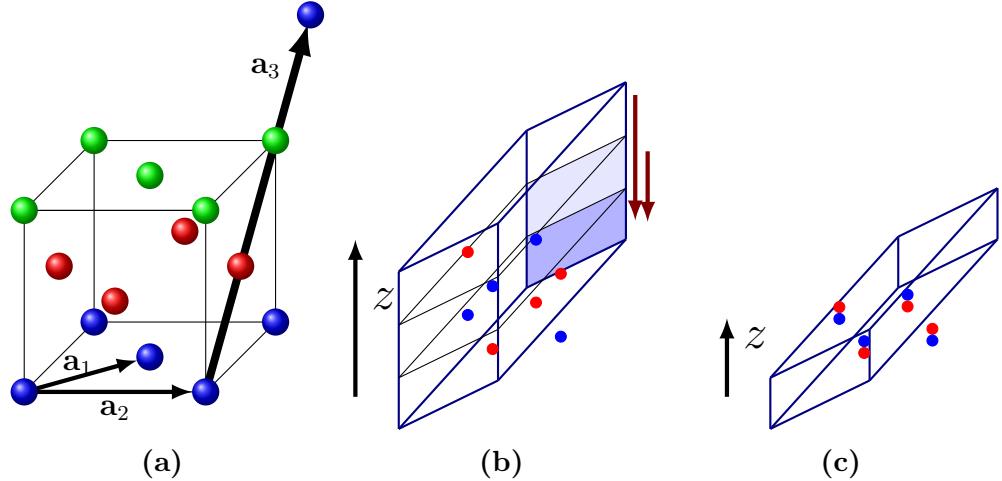


Abbildung 3.37: (a) Einteilung des fcc-Gitters in neue Einheitszellen, die mehrere (hier drei) Bravais-Gitterpunkte des alten Gitters enthalten. (b) Ein zur alten Brillouin-Zone äquivalentes Parallelepiped. Durch die eingezeichneten Verschiebungsvektoren konstruiert man die neue Brillouin-Zone. (c) Ein zur neuen Brillouin-Zone äquivalentes Parallelepiped. Weyl-Punkte unterschiedlicher Chiralität liegen nahe beieinander.

3.5.1 Der Hamiltonoperator für Ladungsdichtewellen in (001)-Richtung

Es werden Ladungsdichtewellen in (001)-Richtung betrachtet. Analog zu Abschnitt 3.3 wird eine dem Problem angemessene neue Wahl der Bravais-Gittervektoren gesucht. Eine Möglichkeit, die Ladungsdichtewellen in (001)-Richtung zulässt, ist

$$\mathbf{a}_1 = \frac{a}{2}n(0, 1, 1), \quad \mathbf{a}_2 = (1, 0, 0), \quad \mathbf{a}_3 = \frac{a}{2}(1, 1, 0). \quad (3.44)$$

Im Folgenden gilt wieder $a = 4$. Die Vektoren \mathbf{a}_2 und \mathbf{a}_3 spannen die Ebene senkrecht zur (001)-Richtung auf (Abbildung 3.37). Die Länge des dritten Vektors legt fest, wie viele Bravais-Gitterpunkte des alten fcc-Gitters in der neuen Einheitszelle enthalten sind (n). In Abbildung 3.37 ist $n = 3$. Jeder farbige Punkt entspricht einem Tetraeder. Zu jeder Einheitszelle gehört ein Punkt jeder Farbe. Die neue Basis besteht aus $4n = 12$ Atomen. Die $4n$ Basispositionen werden gemäß

$$\mathbf{b}_{4j+i} = j\mathbf{a}_1^0 + \mathbf{b}_i \quad (3.45)$$

abgezählt. Dabei ist $\mathbf{a}_1^0 = (0, 2, 2)$ der Standardgittervektor des fcc-Gitters und j eine natürliche Zahl mit $0 \leq j < n$. Zum Beispiel wäre in Abbildung 3.37 die Tetraederposition 1 auf den grünen Tetraedern die neue Atomposition 9, wenn die Zählung bei den blauen Tetraedern startet. Die neue Brillouin-Zone ist äquivalent

zu dem durch die Vektoren

$$\mathbf{c}_1 = \frac{2\pi}{a}(1, -1, 1), \quad \mathbf{c}_2 = \frac{4\pi}{a}(0, 1, -1), \quad \mathbf{c}_3 = \frac{4\pi}{an}(0, 0, 1) \quad (3.46)$$

aufgespannten Spat. In (001)-Richtung verkleinert sich die Brillouin-Zone erwartungsgemäß um den Faktor n . Ein zur alten Brillouin-Zone äquivalenter Spat ist in Abbildung 3.37(b) dargestellt. Wenn sich die Mean-Field-Parameter zunächst nicht ändern, dann reproduziert man die Bandstruktur in der neuen Brillouin-Zone durch Verschieben der alten Brillouin-Zone um ganzzahlige Vielfache des neuen reziproken Gittervektors \mathbf{c}_3 . Dieser Verschiebungsprozess ist in Abbildung 3.37(b) ebenfalls dargestellt. Das Resultat entnimmt man Abbildung 3.37(c). Die Weyl-Punkte mit den Koordinaten $(\pm x, \pm x, x)$ werden in Richtung der Weyl-Punkte $(\pm x, \pm x, -x)$ verschoben. Je nach Ausgangsposition der Weyl-Punkte befinden sich in der neuen Brillouin-Zone Weyl-Punkte unterschiedlicher Chiralität sehr nahe beieinander. In unserem Modell besteht die Möglichkeit, die Position der Weyl-Punkte kontinuierlich durchzufahren und so günstige Parameter zu wählen.

Da jetzt $8n$ verschiedene Zustände pro Einheitszelle existieren ($4n$ Untergitter und Spin), werden die Energieniveaus durch Diagonalisierung einer $8n \times 8n$ -Matrix berechnet. Wie unterscheidet sich diese von der Blochmatrix aus den Gleichungen (2.38) und (2.39)? Der Hamiltonoperator wird, analog zu Gleichung (2.31), zunächst im Ortsraum formuliert:

$$H = \sum_{\mathbf{R}} \sum_{j=0}^{4n-1} \sum_{\substack{i \\ i \text{ NN von } j}} \sum_{\sigma\sigma'} c_{\mathbf{R}'i\sigma}^\dagger h_{ij}^{\sigma\sigma'} c_{\mathbf{R}j\sigma'}. \quad (3.47)$$

Nach Fourier-Transformation und Unterdrückung der Spin-Indizes ergibt sich

$$H = \sum_{\mathbf{k}j} \sum_{\substack{i \\ i \text{ NN von } j}} e^{-i\mathbf{k}\cdot\Delta\mathbf{R}(i,j)} c_{\mathbf{k}i}^\dagger h_{ij} c_{\mathbf{k}j}. \quad (3.48)$$

$\Delta\mathbf{R}(i,j)$ drückt aus, dass die Phase von Anfangs- und Endpunkt des Hüpfprozesses abhängt. In der bisherigen Betrachtung konnte Gleichung (3.48) stets vereinfacht werden, weil zu jedem direkten Hüpfprozess von j nach i ein indirekter Prozess von j zur selben Basisposition i auf einem anderen Bravais-Gitterpunkt existiert hat. Deshalb konnte die Summe über alle nächsten Nachbarn in eine Summe über alle Untergitter überführt werden, in der für jedes Paar Untergitter zwei Terme mit entgegengesetzter Phase auftauchten. Der Hamiltonoperator hat dann die einfache trigonometrische Form aus Gleichung (2.34). Dieses Vorgehen ist hier nicht möglich, weil die indirekten Prozesse $j \rightarrow i$ teilweise in Prozesse

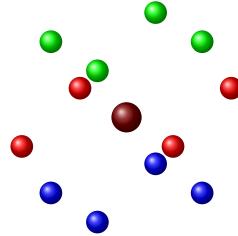


Abbildung 3.38: Benachbarte Bravais-Gitterpunkte des alten fcc-Gitters für den zentralen, dunkelroten Punkt. Zu unterschiedlich gefärbten Tetraedern gehören unterschiedliche Basispositionen. Indirekte Hüpfprozesse zwischen gleich gefärbten Tetraedern führen von (in alter Zählweise) j nach i , Hüpfprozesse von roten (blauen) zu grünen (roten) Tetraedern von j nach $i + 4$.

$j \rightarrow i \pm 4$ übergehen. Abbildung 3.38 zeigt den Grund dafür. Jeder Punkt dieser Abbildung entspricht einem Tetraeder. Betrachtet werden Hüpfprozesse mit Ausgangspunkt auf dem zentralen Tetraeder. Wir betrachten Einheitszellen, die drei Tetraeder, also zwölf Atompositionen, enthalten. Zu den roten (grünen, blauen) Punkten gehören die Positionen 0 bis 3 (4 bis 7, 8 bis 11). Innerhalb des zentralen Tetraeders gibt es direkte NN-Prozesse zwischen den Positionen 0 bis 3. Indirekte Hüpfprozesse zwischen Atome gleicher Nummerierung gibt es nur, wenn die Zielposition ebenfalls auf einem roten Tetraeder liegt. Ein Beispiel verdeutlicht dies. Es werden indirekte Hüpfprozesse von (in alter Zählweise) 0 nach 3 behandelt. Das Zielatom hat die Position $(-1, -1, 0)$. Das ist gerade die Koordinate von Position 3 auf dem Bravais-Gitterpunkt bei $-\mathbf{a}_2$. Indirekte Hüpfprozesse zwischen 0 und 3 existieren also und die Matrixelemente haben die gleiche Form wie in Gleichung (2.34). Weiterhin werden indirekte Hüpfprozesse von (erneut in alter Abzählung) 1 nach 0 betrachtet. Das Zielatom hat die Koordinaten $(0, 2, 2)$. Das entspricht aber keinem Atom der Position 0, sondern der Position 4. Es gibt keine indirekten Hüpfprozesse von 1 nach 0. Die beiden Terme, die in Gleichung (2.34) noch zusammengefasst wurden, stehen jetzt in den separaten Matrixeinträgen \mathcal{H}_{41} und \mathcal{H}_{01} .

Systematisieren lässt sich diese Beobachtung mit Hilfe von Gleichung (1.21). Wenn die z -Komponente der *alten* Bravais-Gitterpunkte sich bei den Hüpfprozessen nicht ändert, dann existieren direkte und indirekte Hüpfprozesse. Aus Gleichung 1.21 ist die Änderung der z -Komponente bekannt:

$$\Delta z = 2(\delta_{1j} - \delta_{1i} + \delta_{2j} - \delta_{2i}). \quad (3.49)$$

Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.3 zusammengefasst. Jeder Eintrag repräsentiert eine 2×2 -Matrix. Einträge der Art \mathcal{H}_{12} bedeuten, dass die 2×2 -Matrizen aus

	0	1	2	3	4	5	6	7
0		\mathcal{H}_{10}^d	\mathcal{H}_{20}^d	\mathcal{H}_{30}		\mathcal{H}_{10}^{id}	\mathcal{H}_{20}^{id}	
1	\mathcal{H}_{01}^d		\mathcal{H}_{21}	\mathcal{H}_{31}^d	\mathcal{H}_{01}^{id}			\mathcal{H}_{31}^{id}
2	\mathcal{H}_{02}^d	\mathcal{H}_{12}		\mathcal{H}_{32}^d	\mathcal{H}_{02}^{id}			\mathcal{H}_{32}^{id}
3	\mathcal{H}_{03}	\mathcal{H}_{13}^d	\mathcal{H}_{23}^d			\mathcal{H}_{13}^{id}	\mathcal{H}_{23}^{id}	

Tabelle 3.3: Aufteilung der NN-Hüpfprozesse zwischen den Positionen 0 bis 3 in Hüpfprozesse zwischen allen Positionen der erweiterten Einheitszelle. Die Positionen 4 bis 7 entsprechen den um einen Vektor \mathbf{a}_1^0 verschobenen Positionen 0 bis 3. Zeilenweise stehen die Ausgangspositionen. Ausführliche Diskussion im Haupttext.

Gleichung (2.34) genutzt werden können. Die Indizes d und id bedeuten, dass in dem Modell mit vergrößerter Einheitszelle die Hüpfprozesse durch nur eine der beiden Exponentialfunktionen beschrieben werden, die in Gleichung (2.34) enthalten sind. Hüpfprozesse von i nach $j + 4$ und von $i + 4$ nach $j + 8$ sind identisch. Deshalb ist der Hamiltonoperator für beliebige n bekannt, wenn er für $n = 2$ bekannt ist. Für die rot eingezeichneten Komponenten verkleinert sich bei den Hüpfprozessen die z -Komponente. Sie sind hervorgehoben, weil sie nur für die aus zwei Tetraedern bestehende Einheitszelle auftauchen. Nur dann sind die Basispositionen in den oberhalb und unterhalb eines betrachteten Tetraeders liegenden Tetradien identisch. Bei drei Tetraedern beschreiben die markierten Einträge deshalb etwa Hüpfprozesse von 0 nach 9, anstelle von 0 nach 5. Für Hüpfprozesse zwischen übernächsten Nachbarn geht man analog vor und nutzt die Gleichungen (1.23) und (1.24). Details sind Anhang A.5 zu entnehmen.

3.5.2 Der Hamiltonoperator für Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung

Um Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung beschreiben zu können, werden die Gittervektoren

$$\mathbf{a}_1 = \frac{a}{2}(1, -1, 0), \quad \mathbf{a}_2 = \frac{a}{2}(0, -1, 1), \quad \mathbf{a}_3 = \frac{a}{2}n(1, 1, 0) \quad (3.50)$$

betrachtet. Jede Einheitszelle enthält n Tetraeder, die jeweils n übereinander liegenden Schichten in (111)-Richtung entstammen (Abbildung 3.39). Die Vektoren

$$\mathbf{c}_1 = \frac{2\pi}{a}(-1, 1, 1), \quad \mathbf{c}_2 = \frac{2\pi}{a}(0, 0, 2), \quad \mathbf{c}_3 = \frac{2\pi}{an}(1, 1, 1) \quad (3.51)$$

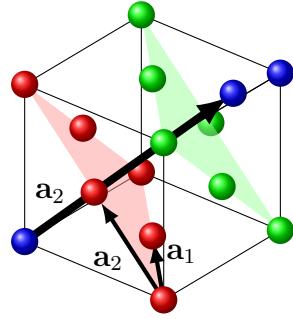


Abbildung 3.39: Einteilung des fcc-Gitters in neue Einheitszellen, die mehrere (hier drei) alte Bravais-Gitterpunkte enthalten.

spannen ein zur ersten Brillouin-Zone äquivalentes Parallelepiped auf. Die Brillouin-Zone verkleiner sich um den Faktor n in (111)-Richtung. Durch Verschiebungen in (111)-Richtung können lediglich die beiden Weyl-Punkte auf der (111)-Achse nahe beieinander landen.

Die Basispositionen in der vergrößerten Einheitszelle werden analog zu oben abgezählt. Es ergibt sich

$$\mathbf{b}_{4j+i} = \mathbf{b}_i + j\mathbf{a}_3^0. \quad (3.52)$$

Erneut schließt sich die Frage an, wie der Hamiltonoperator modifiziert werden muss, um Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung beschreiben zu können. Bei der Beantwortung der Frage hilft Abbildung 3.39. Für Hüpfprozesse innerhalb der (111)-Ebenen können die Einträge des bisher verwendeten Hamiltonoperators übernommen werden. Wenn der Vektor, der verschiedene alte Bravais-Gitterpunkte verbindet, eine Komponente senkrecht zu dieser Ebene hat, dann handelt es sich um Hüpfprozesse zwischen j und $i \pm 4$ und nicht zwischen j und i . Systematisieren lässt sich das wiederum durch Auflösen von Gleichung (3.50) nach den Standardbasisvektoren des fcc-Gitters und Einsetzen in Gleichung (1.21). Details werden im Anhang A.5 angegeben.

3.5.3 Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung

Die Implementation des neuen Hamiltonoperators wird durch Vergleich der Bandstrukturen überprüft. In Abbildung 3.40 werden diese für eine Einheitszelle mit acht Basispositionen [Abbildung 3.40(b)] und für den bisher betrachteten Hamiltonoperator [Abbildung 3.40(a)] entlang der (111)-Richtung gegenübergestellt. In beiden Fällen wurde dieselbe AIAO-Konfiguration und eine homogene Verteilung der Elektronen auf die Tetraeder vorausgesetzt, so dass sich insgesamt dieselben Zustände ergeben. Lediglich die untersten zwölf bzw. sechs Bänder sind abgebildet. Abbildung 3.40(b) geht korrekterweise aus Abbildung 3.40(a) durch Verschieben um den eingezeichneten reziproken Gittervektor in (111)-Richtung hervor.

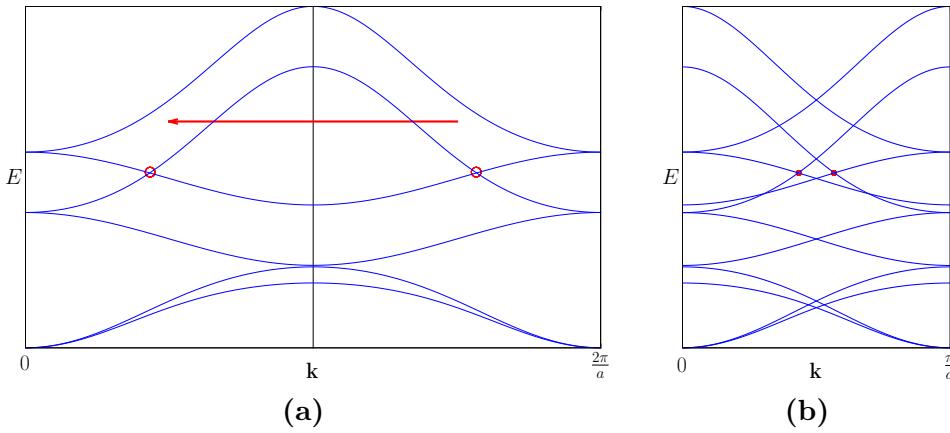


Abbildung 3.40: Spektrum für den Hamiltonoperator (a) der gewöhnlichen Einheitszelle und (b) einer Einheitszelle, die zwei Tetraeder enthält. Das Bandspektrum aus (b) ergibt sich durch die in (a) angedeutete Verschiebung der Bandstruktur.

Der Abstand der jeweils rot eingekreisten Weyl-Punkte verringert sich dabei. Interessant sind die Situationen, in denen nach Rückverschiebung des Spektrums in die neue Brillouin-Zone Weyl-Punkte unterschiedlicher Chiralität nahe beieinander liegen. Mutmaßlich könnten dann schon kleine Änderungen der Mean-Field-Parameter die Energie des System durch Annihilation der Weyl-Punkte senken. Der Weyl-Punkt mit Koordinaten $(-x, -x, -x)$ wird um ein Vielfaches p des neuen Gittervektors \mathbf{c}_3 verschoben. Dann ist der neue Abstand der Weyl-Punkte immer dann klein, wenn x nahe an einem ganzzahligen Vielfachen von $\pi/4n$ liegt, oder – äquivalent dazu – wenn der Verbindungsvektor der Weyl-Punkte in der alten Brillouin-Zone einem ganzzahligen Vielfachen des reziproken Gittervektors \mathbf{c}_3 entspricht. x liegt stets im Intervall $(-\pi/4, \pi/4]$. Parameter, für die der neue Abstand der Weyl-Punkte beinahe verschwindet, sind zum Beispiel

- $n = 2, t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.526$,
- $n = 2, t_\sigma = -1$ und $U = 1.055$,
- $n = 3, t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.548$ oder $U = 1.505$,
- $n = 3, t_\sigma = -1$ und $U = 1.065$ oder $U = 1.045$,
- $n = 4, t_\sigma = -1$ und $U = 1.07$ oder $U = 1.055$,
- $n = 4, t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.548$.

Die Anzahl der zu berechnenden Mean-Field-Parameter beträgt $16n-1$. Praktisch werden alle Besetzungszahlen bestimmt, um hierdurch das chemischen Potentials auf seine Korrektheit hin überprüfen zu können. Für die oben aufgezählten Parameter wurden die Mean-Field-Parameter wiederholt iterativ und mit zufälligen

Startwerten berechnet. Einzelne Rechnungen wurden auch für $n = 5$ durchgeführt. Für alle untersuchten Startwerte, Parameter und Anzahl der Bravaisgitterpunkte n konvergiert die numerische Berechnung aller Mean-Field-Parameter gegen die bereits bekannte Gleichverteilung der Elektronen auf die Basispositionen, verbunden mit der magnetischen AIAO-Ordnung. Es wird keine selbstkonsistente Lösung gefunden, die eine Ladungsdichtewelle beschreibt.

Neben einer vollständigen Mean-Field-Rechnung für $16n$ Parameter, kann die Vorgabe spezieller Ordnungen die Berechnungen vereinfachen. Die Auswahl möglicher Ladungsdichtewellen ist wegen der komplizierten Struktur des Pyrochlor-Gitters sehr groß. Hier wurde für $n = 2$ eine Form der Ladungsdichtewelle vorgegeben, die sich aus der gefundenen Ordnung bei niedrigen Dichten ableitet und die Rotationssymmetrie um die (111)-Richtung erhält. Der wechselwirkende Hamiltonoperator, inklusive die Zeitumkehrsymmetrie brechende magnetische Ordnung, wird als ungestörtes System behandelt. Zusätzlich wird der Ausdruck

$$H_{\text{CDW}} = U\delta \left(n_{0\uparrow} + n_{0\downarrow} - n_{4\uparrow} - n_{4\downarrow} + \frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 [n_{i\uparrow} + n_{i\downarrow} - n_{i+4\uparrow} - n_{i+4\downarrow}] \right) \quad (3.53)$$

hinzugefügt. Jede Einheitszelle enthält Atome aus je zwei Dreiecks- und Kagomé-Gittern. Innerhalb eines jeden Gitters ist die Besetzungszahl gleich, von Schicht zu Schicht variiert sie. δ , die Amplitude der Ladungsdichtewelle, wird selbstkonsistent berechnet. Auch hier zeigt sich, dass $\delta = 0$ die einzige selbstkonsistente Lösung ist.

Um zu verstehen, warum die Weyl-Punkte nicht durch Ausbildung einer Ladungsdichtewelle annihilieren, werden dem System per Hand Dichtewellen hinzugefügt und das Verhalten der Weyl-Punkte untersucht. Wiederum erlaubt das Pyrochlor-Gitter beliebig viele Ausprägungen von Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung. Unterschiedliche Konfigurationen werden getestet, um zu untersuchen, ob allgemeine Verhaltensweisen beobachtet werden können, die die Formation von Ladungsdichtewellen verhindern. Zunächst werden zu Gleichung (3.53) ähnliche Dichtewellen untersucht, also solche, die die Rotationssymmetrie um die (111)-Achse nicht brechen. Die Verteilung der Elektronen auf die einzelnen Dreieck- und Kagomé-Gitterschichten wurde variiert. Einheitszellen unterschiedlicher Größe ($n = 2, \dots, 5$) wurden untersucht. Die Abbildungen gehören zu der Konfiguration $n = 2$ sowie $t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.515$ und einer Dichtewelle entsprechend Gleichung (3.53). Das Spektrum entlang der (111)-Linie ist für verschiedene Werte von δ in Abbildung 3.41 dargestellt. Mit Einsetzen der Ladungsdichtewelle öffnen sich Bandlücken ober- und unterhalb der Fermienergie an den Kreuzungspunkten der Bänder, die durch die Verschiebung der alten Brillouizone entstanden sind (in Abbildung 3.41 grün eingekreist). Die Bänder, deren Kreuzungspunkte die Weyl-

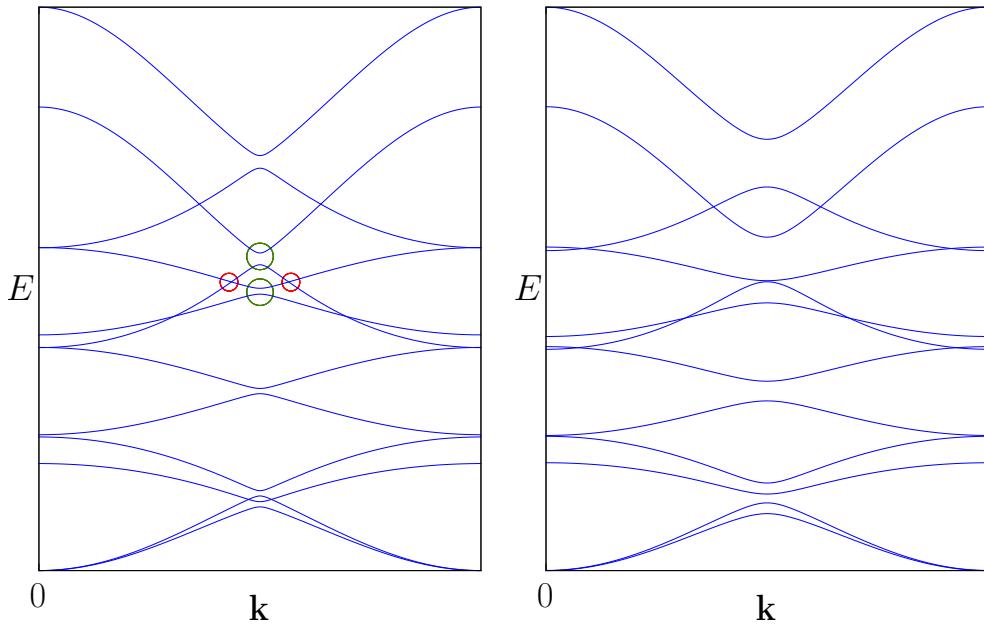


Abbildung 3.41: Bandstruktur für Ladungsdichtewellen, die durch Gleichung (3.53) beschrieben werden. Links ist die Bandstruktur für $\delta = 0.01$ zu sehen. Rechts ist die Bandlücke bereits geöffnet. Hier ist $\delta = 0.038$. Die Weyl-Punkte sind rot eingekreist. Grüne Kreise markieren neu entstandene Bandlücken.

Punkte bilden, werden mit steigendem δ auseinander gezogen, so dass sich wie auf der rechten Seite von Abbildung 3.41 am Punkt $\mathbf{c}_3/2$ eine Bandlücke öffnet. Erwartungsgemäß erhöht sich der Wert von δ , bei dem die Bandlücke öffnet mit steigendem Abstand der Weyl-Punkt voneinander. Die sechs Weyl-Punkte abseits der (111)-Linie bleiben auch bei weiterer Vergrößerung von δ erhalten. In der AIAO-Ordnung sind alle Weyl-Punkte durch Symmetrien verbunden (z.B. Rotationen um die Koordinatenachsen und um die (111)-Richtung [58]), weil die Ordnung keine Symmetrie des Pyrochlordgitters bricht. Das gilt nicht länger. Die erhaltenen Symmetrien verbinden die sechs Weyl-Punkte abseits der (111)-Linie, zum Beispiel verbindet die dreizählige Rotationssymmetrie in (111)-Richtung die Weyl-Punkte gleicher Chiralität miteinander. Deshalb liegen diese Weyl-Punkte alle auf demselben Energieniveau. Das verbliebene Paar ist mit diesen Weyl-Punkten in keiner Weise verknüpft. Seine Energie kann andere Werte annehmen und tut dies auch, wie Abbildung 3.42 zeigt. Die x -Achse endet für den Wert δ , an dem die Weyl-Punkte entlang der (111)-Linie (rot) annihilieren. Das chemische Potential (blau) liegt zwischen dem Energieniveau der Weyl-Punkte auf der (111)-Achse und der Weyl-Punkte abseits davon (grün). Deshalb besteht die Fermi-Fläche im Moment der Annihilation der Weyl-Punkte nicht aus acht Punkten, sondern aus sechs loch- und zwei elektronartigen Fermi-Flächen. Das schwächt das Argument von Peierls ab, da die Bänder in der Nähe des Weyl-Punktes im Moment der

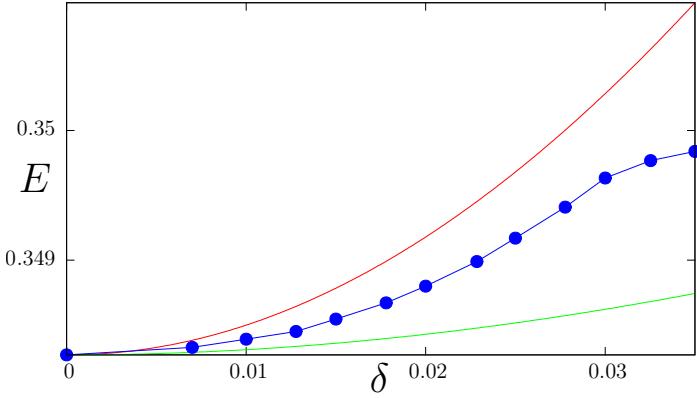


Abbildung 3.42: Entwicklung der Energieniveaus der Weyl-Punkte bei unterschiedlichen Stärken δ der Ladungsdichtewellen. Gezeigt sind das Energieniveau der Punkte auf der (111)-Linie (rot), der Weyl-Punkte abseits dieser Linie (grün), sowie das chemische Potential (blau).

Annihilation unbesetzt sind.

Bis hierhin wurde die AIAO-Ordnung des Hamilton-Operators unverändert gelassen. Kleine Änderungen der magnetischen Ordnung ändern an den Beobachtungen nur Details. Skaliert man etwa die lokale Polarisation pro Gitterplatz mit der Teilchenzahl oder betrachtet magnetische Konfigurationen, wie die für niedrige Dichten bei $t_\sigma = -0.775$ gefundene, dann ändert sich an der obigen Diskussion nichts. Wird die Rotationssymmetrie um die (111)-Richtung zusätzlich gebrochen, sind die annihilierenden Weyl-Punkte nicht länger auf der (111)-Achse fixiert. Auch die Weyl-Punkte abseits der (111)-Linie sind dann nicht mehr durch Rotationen ineinander überführbar. Man beachte, dass Ladungsdichtewellen die Inversionssymmetrie des Pyrochlorgitters und der AIAO-Ordnung im Allgemeinen nicht erhalten. Dies hat aber keine besonderen Auswirkungen auf die Stabilität der Weyl-Punkte, sie können nach wie vor nur durch paarweise Annihilation verschwinden.

Man findet auch Ladungsdichtewellen, bei denen die Weyl-Punkte nicht, wie bisher betrachtet, aufeinander zulaufen und in der Mitte der Brillouin-Zone annihilieren, sondern an die Ränder der Brillouin-Zone wandern. Ein Beispiel ist die Ladungsdichtewelle, bei der auf jedem Tetraeder eine gleiche Anzahl an Elektronen sitzen und die Translationssymmetrie erst durch eine unterschiedliche Verteilung der Elektronen innerhalb der Tetraeder gebrochen wird.

3.5.4 Ladungsdichtewellen in (001)-Richtung

Erneut kann die korrekte Implementierung des Hamiltonoperators durch Vergleich seiner Bandstrukturen mit derjenigen des Hamiltonoperators aus Gleichung

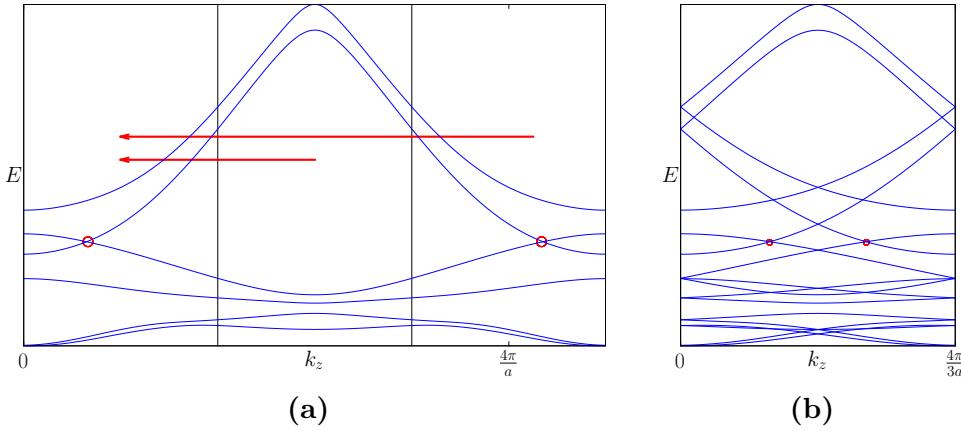


Abbildung 3.43: Spektrum für den Hamiltonoperator (a) der gewöhnlichen Einheitszelle und (b) einer Einheitszelle, die zwei Tetraeder enthält. Das Bandspektrum aus (b) ergibt sich durch die in (a) angedeutete Verschiebungen. Für die Parameter gilt $t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.515$.

(2.47) überprüft werden. Dies geschieht in Abbildung 3.43 für eine Einheitszelle, die drei Tetraeder enthält. Nur die ersten sechs bzw. die ersten 18 Bänder werden gezeigt. Dargestellt ist das Spektrum entlang einer Geraden parallel zur k_z -Achse, wobei die festen Werte für k_x und k_y so gewählt worden sind, dass bei Variation von k_z zwei Weyl-Punkte überstrichen werden. Diese sind rot eingekreist. Der Abstand der beiden Weyl-Punkte hat sich in der neuen Brillouin-Zone verkleinert. Mit der gleichen Argumentation wie im obigen Abschnitt folgt, dass die Koordinate x , die die Position der Weyl-Punkte im Impulsraum beschreibt, nahe bei einem ganzzahligen Vielfachen von $\pi/2n$ liegen muss. Damit sind die bereits aufgezählten Parameter auch hier geeignet, lediglich der Fall $U = 1.505$ fällt heraus. Wiederum werden $16n$ Mean-Field-Parameter berechnet. Erneut zeigt sich, dass die Iterationen gegen die bereits bekannte Gleichverteilung der Elektronen auf die Basispositionen konvergieren. Die magnetischen Momente nehmen die AIAO-Konfiguration an. Auch hier finden wir also keine Ladungsdichtewelle. Durch Vorgabe bestimmter Ordnungen kann auf die Existenz von Ladungsdichtewellen hin geprüft werden, die auf Grund ungeeigneter Startwerte der numerischen Berechnungen – etwa weil der Startwertebereich, der zu dieser Ordnung führt, klein ist – bisher übersehen worden sind. Der Hamiltonoperator, der die AIAO-Ordnung beschreibt, wird als ungestörtes System betrachtet und ein Term hinzugefügt, der eine Ladungsdichtewelle in z -Richtung beschreibt. Betrachtet wird der Ausdruck

$$H_{\text{CDW}} = -U\delta \sum_i \cos\left(\frac{\pi}{n} \hat{\mathbf{e}}_z \cdot \mathbf{b}_i\right). \quad (3.54)$$

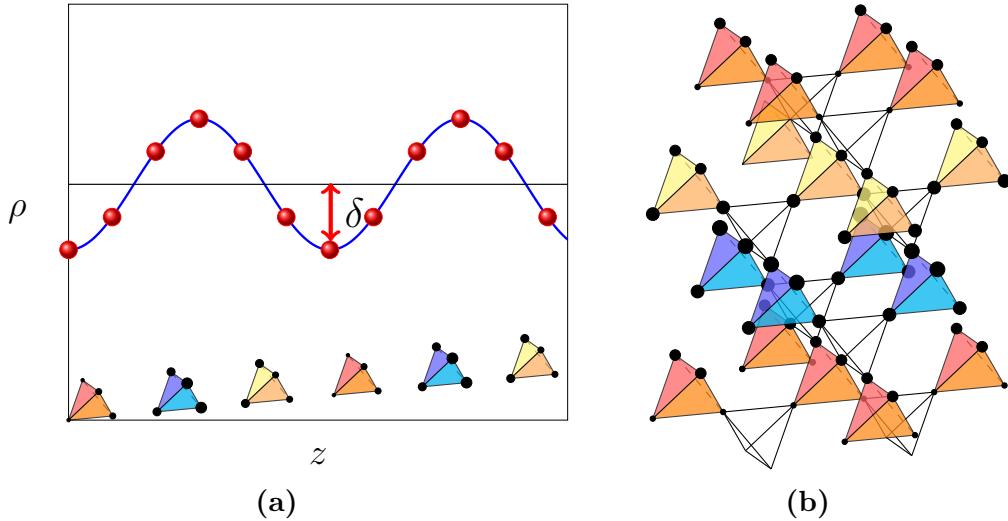


Abbildung 3.44: Veranschaulichung der getesteten Ladungsdichtewelle. (a) zeigt die Oszillation der Besetzungszahlen um die schwarz eingezeichnete Gleichverteilung herum. Die lokale Dichte in den einzelnen zur (001)-Richtung senkrechten Ebenen ist durch rote Kreise gekennzeichnet. Sie haben ihre Entsprechung in den Besetzungszahlen der unmittelbar unter ihnen liegenden Tetraederpunkte. Es liegen jeweils die Eckpunkte der unteren Tetraederkanten genau unterhalb der Kreise. Die Einheitszelle enthält drei Tetraeder. (b) Veranschaulichung der betrachteten Ladungsdichtewelle in einem größeren Ausschnitt des Pyrochlordgitters. Die (001)-Richtung zeigt nach oben.

Der Vektor \mathbf{b}_i ist in Gleichung (3.45) definiert. Durch Gleichung (3.54) wird eine Konfiguration beschrieben, bei der die Besetzungszahlen für die je zwei Positionen einer Einheitszelle mit gleicher z -Koordinate identisch sind. Zwischen den einzelnen (001)-Ebenen oszilliert die Besetzungszahl mit einer Wellenlänge, die sich aus der Anzahl der Tetraeder pro Einheitszelle ergibt, um die Gleichverteilung herum. Gleichung (3.54) gilt für $a = 4$. Abbildung 3.44 veranschaulicht diese Ladungsdichtewelle. In Abbildung 3.44(a) markieren die roten Punkte die Abweichung von der Gleichverteilung für die am unteren Bildrand abgebildeten Tetraeder. Abbildung 3.44(b) zeigt diese Ladungsdichtewelle in einem größeren Ausschnitt des Pyrochlordgitters. Die zweizählige Rotationssymmetrie des Pyrochlordgitters um die Gerade durch den Tetraedermittelpunkt und parallel zur z -Achse wird durch die Ladungsverteilung nicht gebrochen. Ebenfalls durch numerische Rechnungen überprüft wurden Ladungsdichtewellen, bei denen alle Eckpunkte eines Tetraeders gleich besetzt sind, die Besetzungszahl aber von Tetraeder zu Tetraeder variiert. Dies entspricht der gleichen Ladungsverteilung in je zwei direkt übereinanderliegenden Ebenen senkrecht zur (001)-Richtung. In beiden Fällen zeigt eine iterative Bestimmung von δ stets, dass die einzige selbstkonsistente

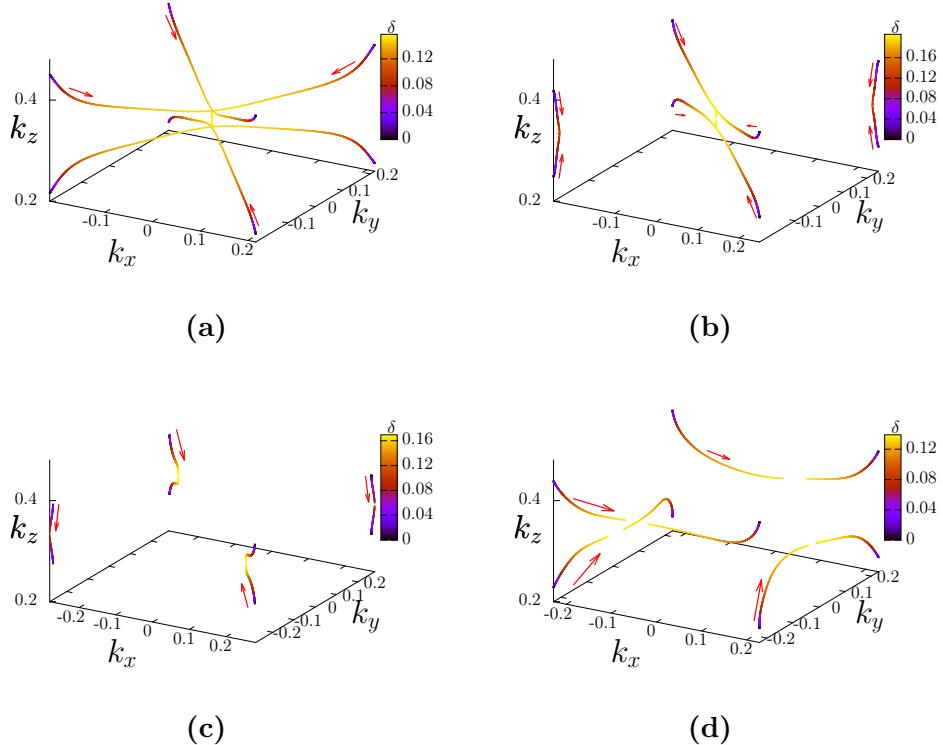


Abbildung 3.45: Annihilation der Weyl-Punkte unter dem Einfluss von Ladungsdichtewellen. In Abhängigkeit der Positionen der Weyl-Punkte erfolgt die Annihilation auf unterschiedliche Arten, zum Beispiel (a) gemeinsam bei $\mathbf{c}_3/2$, (b) teilweise wie in (a) und teilweise paarweise, (c) je paarweise. (d) Auch Weyl-Punkte mit der gleichen z -Komponente können annihilieren. Details werden im Haupttext erklärt.

Lösung $\delta = 0$ ist.

Wie im Falle der Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung, werden jetzt von Hand Ladungsdichtewellen in das System eingefügt und das Verhalten der Weyl-Punkte untersucht. Zunächst werden die beiden oben beschriebenen Ladungsdichtewellen betrachtet. In allen Abbildungen werden die Impulse in Einheiten von $\pi/2$ angegeben. Für hinreichende große Amplituden δ der Ladungsdichtewelle beobachtet man stets eine Annihilation der Weyl-Punkte. Welche Weyl-Punkte paarweise annihilieren, hängt von ihrer Position in der neuen Brillouin-Zone ab. Abbildung 3.45(a) stellt die Änderung der Position der Weyl-Punkte für die Parameter $t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.515$ dar. Die Linien dort zeigen den Verlauf der Positionen der Weyl-Punkte, wenn in Gleichung (3.54) der Parameter δ erhöht wird. Die Farbe der Linien codiert die Größe des Parameters δ . An geeigneten Stellen zeigen rote Pfeile die Bewegungsrichtung an. In der ursprünglichen Brillouin-Zone ist der Verbindungsvektor von Weyl-Punkten mit unterschiedlicher k_z -Komponente für Abbildung 3.45(a) nicht in der Nähe eines ganzzahligen

Vielfachen des neuen reziprolen Gittervektors \mathbf{c}_3 . Auch nach dem Zurückfalten der Brillouin-Zone ist der Abstand der Weyl-Punkte in z -Richtung groß, und sie annihilieren nicht paarweise sondern alle bei $\mathbf{c}_3/2$. Für steigendes U nähert sich der Abstand der Weyl-Punkte in der alten Brillouin-Zone einem ganzzahligen Vielfachen des neuen reziproken Gittervektors. In der Folge ändert sich die Art und Weise, in der die Weyl-Punkte annihilieren. Landen Weyl-Punkte in der neuen Brillouin-Zone hinreichend nahe beieinander, können sie schon bei kleinen δ gegenseitig annihilieren. Abbildung 3.45(b) zeigt für $U = 1.525$, dass vier der acht Weyl-Punkte auf diese Weise verschwinden. Die restlichen Weyl-Punkte laufen weiterhin zum Punkt $(0, 0, \pi/6)$. Dieses unterschiedliche Verhalten ist möglich, weil durch die Ladungsdichtewellen Symmetrien gebrochen werden, die zuvor alle acht Weyl-Punkte miteinander verbunden haben.

Diese Symmetriebrechung hat zwei weitere Konsequenzen. Zum einen annihilieren die Weyl-Punkte bei unterschiedlichen Werten des Parameters δ . In Abbildung 3.45(c) ist dies deutlich zu erkennen. Die Parameterkonfiguration ist mit $t_\sigma = -0.775$ und $U = 1.535$ recht nahe an der oben als günstig identifizierten. Entsprechend annihilieren die Weyl-Punkte jetzt paarweise, allerdings bei deutlich unterschiedlichen Werte für δ . Andererseits liegen auch nur jeweils vier Weyl-Punkte auf demselben Energieniveau. Die Annihilationen der Weyl-Punkte erfolgt deshalb nie bei der Fermi-Energie. Die Weyl-Punkte gehen zuvor immer in je vier elektron- und lochartige Fermi-Flächen über. Es ergeben sich zu Abbildung 3.42 ähnliche Darstellungen. Abbildung 3.45(d) zeigt eine weitere Möglichkeit der paarweisen Annihilation von Weyl-Punkten, die für eine Ladungsdichtewelle auftritt, bei der die Elektronen innerhalb der Tetraeder stets gleichverteilt sind.

In den Fällen, in denen Weyl-Punkte in der zurückgefalteten Brillouin-Zone nahe beieinander liegen, genügen schon kleine Änderungen der Besetzungszahlen, um die Weyl-Punkte paarweise annihilieren zu lassen. Dies entspricht der einleitend beschriebenen Erwartung. Trotzdem sind keine selbstkonsistenten Ladungsdichtewellen gefunden worden. Tatsächlich beobachtet man andere Artefakte in der Bandstruktur, die Ladungsdichtewellen unwahrscheinlich erscheinen lassen. Mit einsetzender Ladungsdichtewelle schließt in der Ebene $k_z = \pi/2n$ eine Bandlücke und es entstehen neue Kreuzungspunkte zwischen den Bändern $4n - 1$ und $4n$. Die Menge aller neuen Kreuzungspunkte zwischen Leitungs- und Valenzband ist ein eindimensionales Objekt, nämlich eine geschlossene Linie in der Ebene $k_z = \pi/2n$. Abbildung 3.46(a) zeigt die Energiedifferenz zwischen Leitungs- und Valenzband in dieser Ebene für $n = 4$, $U = 1.515$, $t_\sigma = -0.775$ und $\delta = 0.8$. Die Weyl-Punkte sind bereits annihiliert. Rotationen um π um die k_z -Achse überführen diese Abbildung in sich selbst, das ist konsistent mit den erhaltenen Symmetrien. Die Schnittpunktmenge bleibt bei weiterer Erhöhung von

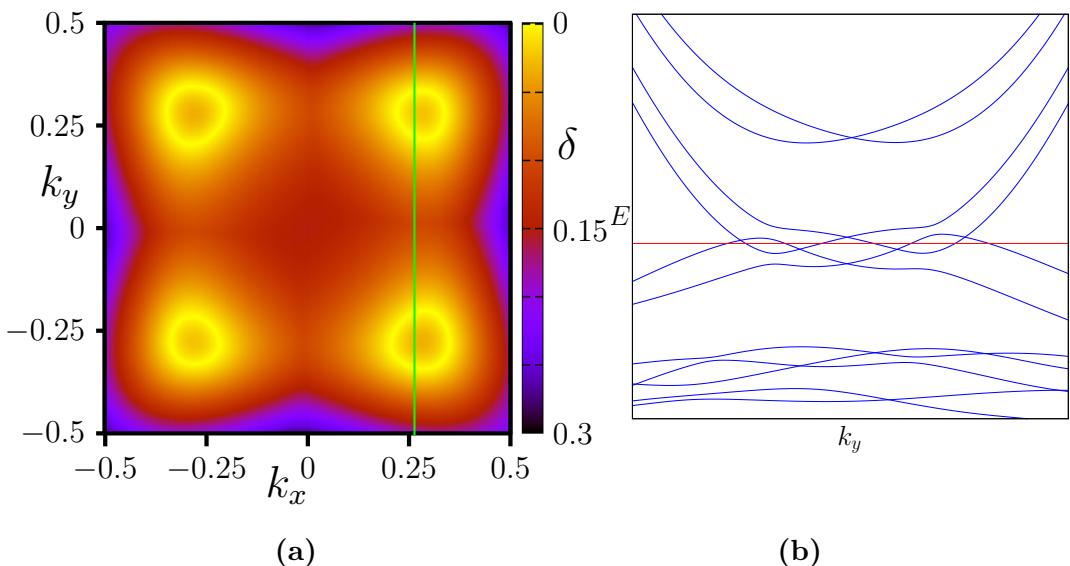


Abbildung 3.46: (a) Energiedifferenz von Leitungs- und Valenzbändern. In der hier dargestellten Ebene $k_z = \pi/8$ schneiden diese sich entlang von geschlossenen Linien. (b) Bandstruktur entlang der in (a) eingezeichneten grünen Linie. Man erkennt die vier Schnittpunkte der Bänder, sowie acht Schnittpunkte mit dem rot eingezeichneten chemischen Potential.

δ erhalten, lediglich die Positionen k_x und k_y ändern sich. Abbildung 3.46(b) zeigt die Bandstruktur entlang der in Abbildung 3.46(a) eingezeichneten grünen Linie. Das Spektrum ist nicht spiegelsymmetrisch. Man erkennt die vier Kreuzungspunkte der Bänder. Ebenfalls zu erkennen ist, dass die Kreuzungspunkte nicht bei der gleichen Energie liegen, so dass das chemische Potential entlang dieser Linie achtmal geschnitten wird. Die Menge aller Schnittpunkte nennen wir im Folgenden Fermi-Linie, auch wenn nicht alle Schnittpunkte auf dem Niveau der Fermi-Energie liegen, sondern nur (mindestens) zwei. Für jede kleine Abweichung von $k_z = \pi/6$ findet man eine Bandlücke.

Die neuen Kreuzungspunkte existieren bereits, bevor die Weyl-Punkte in dieser Ebene annihilieren. In Abbildung 3.47(a) ist dies zu erkennen. Dargestellt ist auch dort die Energiedifferenz zwischen den Bändern $4n - 1$ und $4n$ in einer Ebene senkrecht zu $k_z = \pi/2n$. Die Parameterkonfiguration ist $U = 1.515$ und $\delta = 0.036$. Die x -Achse zeigt in Richtung des Vektors $(1, 1, 0)$ die y -Achse in Richtung k_z . Im linken Teil der Abbildung erkennt man bei geeigneter Skalierung drei Punkte, an denen sich die Bänder kreuzen und die Energiedifferenz verschwindet. Dies sind die beiden Weyl-Punkte und einer der beiden Schnittpunkte der Fermi-Linie mit der betrachteten Ebene. Zwischen den beiden Weyl-Punkten ist die Energiedifferenz der Bänder zwar sehr klein, aber trotzdem immer größer als null. Der zweite Schnittpunkt der Fermi-Linie mit der Ebene ist deutlich in der rechten Hälfte

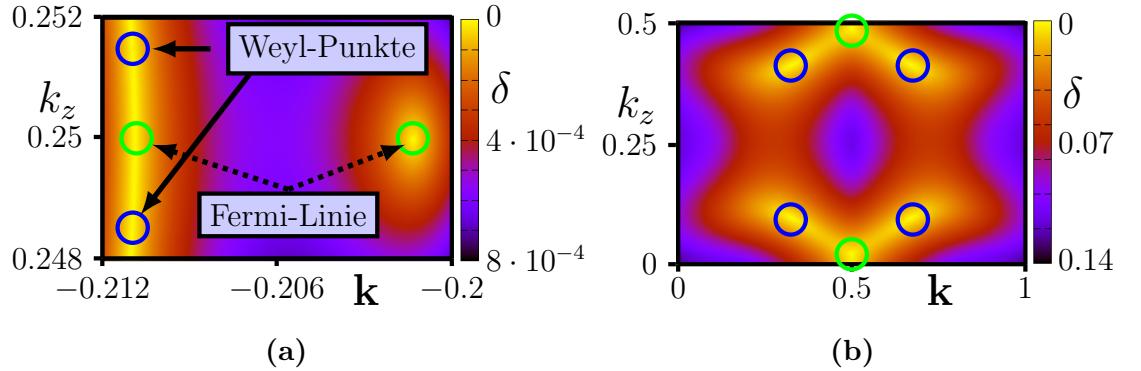


Abbildung 3.47: (a) Koexistenz von Weyl-Punkten und Fermi-Ringen. Dargestellt ist eine Ebene mit Richtungsvektoren $(1,1,0)$ und $(0,0,1)$ in der Brillouin-Zone. (b) Entstehung neuer Weyl-Punkte am Rand der Brillouin-Zone. Man erkennt die vier Weyl-Punkte mit den $k_x k_y$ -Koordinaten $(\pm x, \pm x)$ (blau umkreist) und zwei neu entstandene Weyl-Punkte (grün umkreist).

der Abbildung zu erkennen. Die Bandlücke verschwindet tatsächlich nur für $\pi/2n$ (hier $\pi/8$) und die Menge der Schnittpunkte der beiden Bänder ist eindimensional. Eindimensionale Fermi-Linien sind in drei Dimensionen nicht stabil [44]. Es zeigt sich, dass diese Kreuzungspunkte nicht auftreten, wenn – etwa durch Rotieren eines einzelnen Spins – alle räumlichen Symmetrien des Gitters gebrochen werden. Dann annihilieren allerdings auch nicht alle Weyl-Punkte. Eine genauere Analyse der Symmetrien, die die Kreuzungslinie der Bänder schützt, wäre von Interesse. Die Existenz dieser zusätzlichen Kreuzungspunkte spricht ebenfalls gegen die Anwendbarkeit des Peierls-Arguments zur Ausbildung der Ladungsdichtewellen. Die gleiche Diskussion ist möglich, wenn Ladungsdichtewellen betrachtet werden, in denen zusätzlich die AIAO-Ordnung modifiziert wird, solange die Rotationssymmetrie um die z -Achse erhalten bleibt, etwa indem die lokale Polarisation mit der Besetzungszahl skaliert wird.

Ein bei fast allen untersuchten Ladungsdichtewellen beobachtetes Phänomen ist die paarweise Erzeugung neuer Weyl-Punkte. Diese annihilieren mit den bereits bestehenden Weyl-Punkten, ähnlich zu dem Verhalten, das für das topologisch Weyl-Semimetal vom Typ II gefunden wurde. Ebenfalls möglich ist, dass am Rand der Brillouin-Zone neue Weyl-Punkte entstehen, die in entgegengesetzter Richtung zur Mitte wandern um dort wieder zu annihilieren. Abbildung 3.47(b) zeigt eine solche Entstehung zweier neuer Weyl-Punkte. Dargestellt ist eine Ebene der gleichen Orientierung wie in Abbildung 3.47(a).

Diese Liste an Beobachtungen lässt sich bei Betrachtungen weiterer Ladungsdichtewellen beliebig fortsetzen. Allgemeine Argumente, die die Existenz von Ladungsdichtewellen verbieten, lassen sich so schwer finden. Für jeden konkreten

Fall beobachtet man aber Phänomene, die das ursprüngliche Argument Peierls abzuschwächen scheinen, etwa die Entstehung neuer Weyl-Punkte bei großen δ , die Entstehung eindimensionaler Schnittmengen oder eine unterschiedliche Verschiebung der Energien für verschiedene Weyl-Punkte.

4 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde ein von Witczak-Krempa und Kim [56] eingeführtes Tight-Binding-Modell mit Hubbard-Wechselwirkung für die $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Zustände der Iridiumatome auf dem Pyrochlordgitter untersucht. Die Gültigkeit des Modells und alternative Ansätze sind in Abschnitt 1.2.3 diskutiert worden. Das betrachtete Modell wurde aus den Symmetrieeigenschaften des Pyrochlor-gitters hergeleitet. Die Verbindung zu mikroskopisch motivierten Modellen, wie sie etwa in [3] untersucht werden, wurde ausführlich diskutiert. Das Mean-Field-Phasen-Diagramm aus Referenz [56] wurde reproduziert. Die gleichen magnetischen Ordnungen wurden gefunden, ebenso wie die Entwicklung der Polarisation für spezifische Werte von t_σ mit [56] exakt übereinstimmt. Für die rAI-Ordnung wurde das gefundene Konvergenzverhalten der magnetischen Momente für den Limes $t_i/U \rightarrow \infty$ untersucht. Es stimmt mit den Mean-Field-Resultaten für ein Modell lokalisierter Spins überein [67]. In Übereinstimmung mit den Resultaten aus [3] wurde die isolierende Phase ohne magnetische Ordnung als starker topologischer Isolator identifiziert. Die wichtigsten Eigenschaften dieser Phase wurden gezeigt. Die Berechnung der Oberflächenbänder und des Spinerwartungswertes an der Fermi-Kante zeigt, dass die Oberfläche des Isolators ein topologisches Metall ist. Die in [56], [61] und [11] gefundene Weyl-Phase wurde ebenfalls gefunden. Untersuchungen zum Berry-Fluss haben den topologischen Charakter dieser Phase gezeigt. In dieser Phase existieren acht Weyl-Punkte auf Linien hoher Symmetrie in der Brillouin-Zone. Die bisher magnetisches Metall genannte Phase wurde weiter unterteilt. An ihre Stelle treten ein topologisches Weyl-Semimetall vom Typ II mit acht Weyl-Punkten, ein topologisches Weyl-Semimetall mit 16 Weyl-Punkten und ein magnetisches Metall mit elektron- und lochartigen Fermiflächen, die sich nicht berühren. Die Oberflächenzustände des Weyl-Semimetalls sind für einen endlichen Festkörper mit Grenzflächen senkrecht zur (001)- und zur (111)-Richtung berechnet worden. Im letzteren Fall werden Weyl-Punkte unterschiedli-

cher Chiralität paarweise auf die gleichen Punkte der Oberflächen-Brillouin-Zone projiziert. Deshalb findet man keine topologisch geschützten Randzustände. Anders verhält es sich mit der Oberfläche senkrecht zur (001)-Richtung. Wie erwartet findet man Fermi-Arcs, die die Projektionen der Weyl-Punkte verbinden. Es zeigt sich, dass die Konnektivitäten der Weyl-Punkte von den äußeren Parametern abhängen. Ein ähnliches Verhalten wurde für ein Inversionssymmetrie brechendes Weyl-Semimetall auf dem Pyrochlordgitter gefunden [71]. Die Einschränkungen der Symmetrie auf die erlaubten Verbindungen wurden diskutiert. Darauf aufbauend wurden die erlaubten Konnektivitäten beschrieben. Die meisten von ihnen wurden für die betrachteten Parameter gefunden. Es ist zu vermuten, dass auch die verbleibenden für geeignete Parameter realisiert werden. Eine Diskussion der Oberflächen senkrecht zur (111)-Richtung wäre an dieser Stelle noch von Interesse, insbesondere weil Pyrochloriridate natürliche Spaltflächen mit dieser Orientierung aufweisen. Weitere Erweiterungen sind bereits im entsprechenden Abschnitt diskutiert worden.

Des Weiteren wurde die magnetische Ordnung auf dem Pyrochlordgitter bei niedrigeren Elektronendichten untersucht. Man findet stark t_σ -abhängiges Verhalten, aber in jedem Fall neue magnetische Ordnungen, die bis auf wenige Ausnahmen mit der AIAO- oder verwandten Phasen in Verbindung gebracht werden können. Für größere Dichten verschwindet die magnetische Ordnung schnell. Da der Hamiltonoperator nicht Teilchen-Loch-symmetrisch ist, ist dies ein zulässiges Verhalten. Drei unterschiedliche Arten von Ladungsdichtewellen wurden ebenfalls gefunden. Für $t_\sigma = -0.775$ ergibt sich bei halber Füllung eine Ladungsdichtewelle, bei der je alle Dreiecks- und Kagomé-Gitter in (111)-Richtung gleich besetzt sind. In der Bandstruktur dieser Ladungsdichtewelle findet sich ein linearer Kreuzungspunkt zwischen zweitem und drittem Band. Hier könnte also ein Weyl-Semimetall mit lediglich zwei Weyl-Punkten vorliegen. Die Weyl-Punkte liegen nur auf derjenigen zur (111)-Richtung äquivalenten Richtung, die durch die Ladungsdichtewelle ausgezeichnet wird. Die bei niedrigen Dichten gefundenen magnetischen Ordnungen haben alle ein magnetisches Gesamtmoment, während die Ordnungen bei hohen Dichten antiferromagnetisch sind. Ein Vergleich mit einem entsprechenden Spin-Modell wäre interessant. Shinaoka *et al.* [13] finden in dem von ihnen betrachteten Modell konkurrierende Tendenzen hin zu antiferromagnetischer oder ferromagnetischer Ordnung, die ihren Ursprung in unterschiedlichen anisotropen Termen haben.

Das Modell wurde so erweitert, dass auch kammensurable Ladungsdichtewellen beschrieben werden können. Die Modifizierungen, die dafür nötig sind, wurden diskutiert. Ausgehend von dem Argument von Peierls [75], dass Ladungsdichtewellen Lücken im Spektrum öffnen können, wenn die so entstehenden neuen rezi-

proken Gittervektoren unterschiedliche Teile der Fermi-Fläche verbinden, wurde die Nesting-Bedingung in den verschiedenen Richtungen diskutiert. Eine Untersuchung der Stabilität der Weyl-Phase gegen Ladungsdichtewellen in (001)- und (111)-Richtung erschien in Folge der Diskussion vielversprechend. Zwei Ansätze wurden weiter verfolgt. Sowohl Mean-Field-Rechnungen für alle Ordnungsparameter ($n_{\max} = 59$), als auch für vorgegebene Konfigurationen wurden durchgeführt. Dabei sind Ladungsdichtewellen vorgegeben worden, die aus Symmetriegründen plausibel erschienen, weil sie Rotationssymmetrien um die Richtung der Ladungsdichtewelle erhalten. Weder in (001)- noch in (111)-Richtung wurden Ladungsdichtewellen gefunden. Das gilt sowohl für die volle Mean-Field-Rechnung, als auch für die Untersuchung der vorgegebenen Ordnungen. Um dieses Verhalten zu verstehen, wurden dem System künstliche Ladungsdichtewellen hinzugefügt und das Verhalten der Weyl-Punkte untersucht. Eine paarweise Annihilation der Weyl-Punkte ist generell möglich, wenn diese in der neuen Brillouin-Zone nahe beieinander liegen. Es wurden aber auch jeweils Beobachtungen gemacht, die das Argument von Peierls abschwächen. So bricht etwa die Ladungsdichtewelle stets bestimmte Symmetrien, die bisher dafür gesorgt haben, dass alle Weyl-Punkte energetisch gleich sind und Annihilationen deshalb auf dem Niveau der Fermi-Energie stattfinden. Der nächste Schritt bestünde darin zu überprüfen, ob durch Variation der Elektronendichte bestimmte Ladungsdichtewellen Paare von Weyl-Punkten genau an der Fermi-Kante annihilieren. Dann sollte das Peierls-Argument wieder volle Gültigkeit haben. In (001)-Richtung kommt es bei Ladungsdichtewellen bestimmter Symmetrie zu Ausbildung einer neuen Schnittmenge zwischen Valenz- und Leitungsbändern. Diese ist ein eindimensionales Objekt, nämlich eine geschlossene Linie in einer Ebene mit fester k_z -Komponente. Bricht die Ladungsdichtewelle etwa die Rotationssymmetrie um die k_z -Richtung, dann taucht dieses Phänomen nicht auf, gleichzeitig annihilieren dann aber auch nicht mehr alle Weyl-Punkte bei niedrigen Amplituden der Ladungsdichtewelle. Eine systematische Analyse der Symmetrien des Pyrochlogitters und des Zusammenhangs zwischen Ladungsdichtewellen, die diese Symmetrien brechen, und der möglichen Annihilation von Weyl-Punkten ist von Interesse. Ebenfalls interessant wäre die Untersuchung der Lindhard-Funktion, um Instabilitäten zu finden. Dadurch könnte auch die Vorgabe der Kommensurabilität fallengelassen werden. Mit der Lindhard-Funktion wird zum Beispiel in [71] argumentiert, dass die führende Instabilität des $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Modells den Ordnungsvektor $\mathbf{q} = 0$ hat. Allerdings wird dort das Modell mit durchschnittlich 1.5 Elektronen pro Gitterplatz diskutiert und die fast vorhandene Teilchen-Loch-Symmetrie der Bandstruktur ausgenutzt, um diese Schlüsse zu ziehen. Das sollte sich also nicht leicht auf den hier betrachteten Fall übertragen lassen.

In dem betrachteten Modell tritt magnetische Ordnung erst für recht große Werte der Wechselwirkungsstärke auf. Bei der Diskussion niedriger Elektronendichten wird magnetische Ordnung bereits für kleinere Werte von U gefunden. Außerdem existiert möglicherweise ein Weyl-Semimetall bei durchschnittlich 0.5 Elektronen pro Gitterplatz. Zu diesen Parametern könnten weitere Berechnungen durchgeführt werden, im Hinblick darauf, ob die Ausbildung von Ladungsdichtewellen in Weyl-Semimetallen bei geringerer Coulomb-Abstoßung möglich wäre. Auch weiterführende Methoden jenseits der Hartree-Fock-Entkopplung könnten überprüft werden, insbesondere sind die bisher gefundenen Ladungsdichtewellen in Weyl-Semimetallen [79], [78] mit anderen Methoden erreicht worden. Ladungsdichtewellen treten dort entweder als Konsequenz gebrochener chiraler Symmetrie auf, oder aber wenn die Hubbard-Wirkung attraktiv ist. Ebenfalls möglich wäre die Berücksichtigung einer Coulomb-Abstoßung zwischen nächsten Nachbarn in den numerischen Berechnungen. Für solche Fälle sind auf dem Pyrochlordgitter (aber nicht in der Weyl-Semimetallphase) Ladungsdichtewellen gefunden worden [58].

Der experimentelle Zugang zu den gefundenen Ergebnisse ist schwer zu beurteilen. Es ist wohl als Ausdruck der Kompliziertheit des Gitters zu verstehen, dass verschiedene Modelle auf dem Pyrochlordgitter eine Vielfalt an Phasen vorhersagen können. Allein für das einfache Modell, das hier betrachtet wurde, existieren bereits – je nach Zählweise – bis zu neun verschiedene Phasen. Zwar erlaubt die Wahl verschiedener Substituenten für R in der Strukturformel $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ der Pyrochloriridate Zugriff auf verschiedene Punkte des Parameterraumes, allerdings ist die Weyl-Phase selbst nur ein sehr kleiner Bereich des Phasendiagramms. Die neuen Klassifizierungen nach Weyl-Semimetall erster und zweiter Art unterteilen diesen Bereich noch weiter, ebenso wie eine Unterteilung der Weyl-Phase nach den Konnektivitäten der Fermi-Arcs. Generell wird in den Modellen, die über das $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Bild hinausgehen, zwar die gleiche magnetische Ordnung, aber keine Weyl-Phase gefunden [63], [13]. Auch experimentell ist das Weyl-Semimetall auf dem Pyrochlordgitter – oder allgemeiner mit gebrochener Zeitumkehrsymmetrie – noch nicht entdeckt worden. Der enorme experimentelle Fortschritt, der erst mit Erstbeschreibung der Weyl-Phase durch Wan *et al.* [4] eingesetzt hat, gibt jedoch Anlass zur Hoffnung. Die Elektronendichten, für die Ladungsdichtewellen gefunden wurden, sind experimentell realisierbar, zum Beispiel hat $\text{Y}_{1.5}\text{Ca}_{0.5}\text{Ir}_2\text{O}_7$ eine mittlere Dichte von 0.5 Elektronen pro Gitterplatz [73].

Zusammenfassend wurde in dieser Arbeit bestätigt, dass das Zusammenspiel von starker Spin-Bahn-Kopplung und Elektronenkorrelationen die Tür zu einer Vielzahl neuer interessanter Phasen öffnet. Am Beispiel der Pyrochloriridate wurden das topologische Weyl-Semimetall ausführlich diskutiert. Entgegen der Er-

wartung kommt es zu keiner Ausbildung von Ladungsdichtewellen unter paarweiser Annihilation von Weyl-Punkten. Dies scheint aber eher der komplizierten Struktur der Pyrochloriridate geschuldet, als eine intrinsische Eigenschaft der Weyl-Phase selbst zu sein. Die gefundenen Ladungsdichtewellen in anderen Modellen zu Weyl-Semimetallen zeigen dies.

A Anhang

A.1 Details zu mikroskopischen Hüpfprozessen

Wir diskutieren noch einige Details zur Herleitung des symmetrieerlaubten Hamiltonoperators aus Gleichung (2.20). Zunächst geben wir die Rotationsmatrizen in Orts- und Spinraum an. Mit den Informationen aus Tabelle 1.1 findet man leicht die durch die Oktaeder definierten lokalen Koordinatensysteme. Die Richtung der lokalen Basisvektoren stehen spaltenweise in den Matrizen, die die globale Basis in die lokalen transformieren. Wir erhalten:

$$R^{(0)} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 2 & -1 & -2 \\ -1 & 2 & -2 \\ 2 & 2 & 1 \end{pmatrix}, \quad R^{(1)} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 2 & 2 & 1 \\ -2 & 1 & 2 \\ 1 & -2 & 2 \end{pmatrix},$$

$$R^{(2)} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 1 & -2 & 2 \\ 2 & 2 & 1 \\ -2 & 1 & 2 \end{pmatrix}, \quad R^{(3)} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 1 & -2 & 2 \\ -2 & -2 & -1 \\ 2 & -1 & -2 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.1})$$

Im Spinraum werden diese Rotationen durch entsprechende Elemente aus $SU(2)$ beschrieben:

$$D^{(0)} = \begin{pmatrix} \sqrt{\frac{2}{3}} & \frac{1-i}{\sqrt{6}} \\ -\frac{1+i}{\sqrt{6}} & \sqrt{\frac{2}{3}} \end{pmatrix}, \quad D^{(1)} = \begin{pmatrix} -\frac{2+i}{\sqrt{6}} & -\frac{i}{\sqrt{6}} \\ -\frac{i}{\sqrt{6}} & -\frac{2-i}{\sqrt{6}} \end{pmatrix},$$

$$D^{(2)} = \begin{pmatrix} \frac{2-i}{\sqrt{6}} & -\frac{1}{\sqrt{6}} \\ \frac{1}{\sqrt{6}} & \frac{2+i}{\sqrt{6}} \end{pmatrix}, \quad D^{(3)} = \begin{pmatrix} -\frac{i}{\sqrt{6}} & \frac{1-2i}{\sqrt{6}} \\ -\frac{1+2i}{\sqrt{6}} & \frac{i}{\sqrt{6}} \end{pmatrix}. \quad (\text{A.2})$$

Beim Sauerstoff-vermittelten Hüpfen legen die beteiligten Tetraedereckpunkte fest, welche Orbitale eine Rolle spielen. Ein Beispiel macht dies deutlich. Betrachte werde das Hüpfen zwischen den Tetraederecken $0 = (0, 0, 0)$ und $3 = (1, 1, 0)$.

Tabelle A.1: Hüpfmatrizen für Sauerstoff-vermittelte Prozesse. Zeilenweise stehen die Ausgangsatome, spaltenweise die Zielatome.

	0	1	2	3
0	τ_y^+	τ_x^+	τ_z^-	
1	τ_z^-		τ_x^+	τ_y^+
2	τ_z^-	τ_y^+		τ_x^+
3	τ_y^+	τ_z^-	τ_x^+	

Der gemeinsame Sauerstoffnachbar hat die Position $(1/2, 1/2, 1/4)$. Die Verbindungsvektoren \mathbf{r}_{10} und \mathbf{r}_{30} entsprechen der negativen lokalen z -Richtung bei 0 und der positiven y -Richtung bei 3. Die Slater-Koster-Tabelle [59] gibt für das Hüpfmatrixelement von d - in p -Orbitale, deren Verbindungsvektor durch den Richtungscosinus (l, m, n) beschrieben wird, zum Beispiel den Ausdruck

$$E_{x,xy} = \sqrt{3}l^2mV_{pd\sigma} + m(1 - 2l^2)V_{pd\pi}. \quad (\text{A.3})$$

Auswertung aller benötigten Ausdrücke ergibt

$$\tau_x^\pm = \pm V_{pd\pi} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \tau_y^\pm = \pm V_{pd\pi} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \tau_z^\pm = \pm V_{pd\pi} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.4})$$

Für die $\tau_{i,i'}$ aus Gleichung (2.22) gilt dann in obigem Beispiel $\tau_{03} = \tau_z^-$ und $\tau_{30} = \tau_y^+$. Eine Übersicht über alle Fälle gibt Tabelle A.1.

Der Zusammenhang zwischen den Gleichungen (2.19) und (2.20) ist in Abschnitt 2.1.2 nur für das Hüpfen über die Sauerstoffatome detailliert diskutiert worden. Wir holen die Diskussion der direkten Hüpfprozesse hier nach. Die Transformationsvorschrift für die d -Orbitale ergibt sich durch Einsetzen der allgemeisten Koordinatentransformation

$$\begin{aligned} x' &= ax + by + cz \\ y' &= dx + ey + fz \\ z' &= gx + hy + iz \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

in die Ausdrücke für die d -Orbitale (Gleichung (1.7)) und anschließenden Koeffizientenvergleich. Die Transformationsmatrix lautet

$$R_d = \begin{pmatrix} a^2 - d^2 + (c^2 - f^2)/2 & \sqrt{3}/2(c^2 - f^2) & bc - ef & ac - df & ab - de \\ \frac{1}{3}(2g^2 - 2a^2 - d^2 + i^2 - 0,5(c^2 + f^2) & i^2 - c^2 - 0,5f^2 & \frac{1}{3}(2hi - bc - ef) & 1/\sqrt{3}(2gi - ac - df) & \frac{1}{3}(2gh - de - ab) \\ 2dg - fi & \sqrt{3}fi & ei + fh & di + fg & ge + dh \\ 2ag + ci & \sqrt{3}ci & ch + bi & ai + cg & ah + gb \\ 2da + cf & \sqrt{3}cf & bf + ce & af + dc & ae + bd \end{pmatrix}. \quad (\text{A.6})$$

Diese Matrix überführt die lokalen d -Orbitale in globale Koordinaten. Für Hüpfprozesse zwischen d -Orbitalen, die bezüglich desselben Koordinatensystems formuliert sind, liefern wieder [59] die Überlappintegrale. Mit den Abkürzungen δ für den Ausdruck $V_{dd\delta}$, also dem Integral zwischen dem $d\delta$ -Orbital am ersten Atom und dem $d\delta$ -Orbital am zweiten Atom und entsprechenden Abkürzungen π und σ ergibt sich für die Hüpfmatrix zwischen den d -Orbitalen in globalen Koordinaten die Matrix H mit den Einträgen

$$H_{00} = \frac{3}{4}(l^2 - m^2)^2\sigma + (l^2 + m^2 - (l^2 - m^2)^2)\pi + (n^2 + (l^2 - m^2)^2)\frac{\delta}{4}, \quad (\text{A.7})$$

$$H_{01} = \sqrt{3}((l^2 - m^2)(n^2 - (l^2 + m^2)/2)\sigma/2 + n^2(m^2 - l^2)\pi + (1 + n^2)(l^2 - m^2)\frac{\delta}{4}), \quad (\text{A.8})$$

$$H_{02} = 3/2mn(l^2 - m^2)\sigma - mn(1 + 2(l^2 - m^2))\pi + mn(1 + (l^2 - m^2)\frac{\delta}{2}), \quad (\text{A.9})$$

$$H_{03} = 3/2ln(l^2 - m^2)\sigma + nl(1 - 2(l^2 - m^2))\pi - nl(1 - (l^2 - m^2)\frac{\delta}{2}), \quad (\text{A.10})$$

$$H_{04} = 3/2ml(l^2 - m^2)\sigma + 2lm(m^2 - l^2)\pi + lm(l^2 - m^2)\frac{\delta}{2}, \quad (\text{A.11})$$

$$H_{11} = (n^2 - (l^2 + m^2)/2)^2\sigma + 3n^2(l^2 + m^2)\pi + 374(l^2 + m^2)^2\delta, \quad (\text{A.12})$$

$$H_{12} = \sqrt{3}(mn(n^2 - (l^2 + m^2)/2)\sigma + mn(l^2 + m^2 - n^2)\pi - mn(l^2 + m^2)\frac{\delta}{2}), \quad (\text{A.13})$$

$$H_{13} = \sqrt{3}(ln(n^2 - (l^2 + m^2)/2)\sigma + ln(l^2 + m^2 - n^2)\pi - ln(l^2 + m^2)\frac{\delta}{2}), \quad (\text{A.14})$$

$$H_{14} = \sqrt{3}(lm(n^2 - (l^2 + m^2)/2)\sigma - 2lmn^2\pi + lm(1 + n^2)\frac{\delta}{2}), \quad (\text{A.15})$$

$$H_{22} = 3m^2n^2\sigma + (m^2 + n^2 - 4m^2n^2)\pi + (l^2 + m^2n^2)\delta, \quad (\text{A.16})$$

$$H_{23} = 3mn^2l\sigma + ml(1 - 4n^2)\pi + ml(n^2 - 1)\delta, \quad (\text{A.17})$$

$$H_{24} = 3lm^2n\sigma + ln(1 - 4m^2)\pi + ln(m^2 - 1)\delta, \quad (\text{A.18})$$

$$H_{33} = 3n^2l^2\sigma + (n^2 + l^2 - 4n^2l^2)\pi + (m^2 + n^2l^2)\delta, \quad (\text{A.19})$$

$$H_{34} = 3nl^2m\sigma + nm(1 - 4l^2)\pi + mn(l^2 - 1)\delta, \quad (\text{A.20})$$

$$H_{44} = 3l^2m^2\sigma + (l^2 + m^2 - 4l^2m^2)\pi + (n^2 + l^2m^2)\delta. \quad (\text{A.21})$$

Der vollständige Zusammenhang zwischen den lokalen Spin-Orbit-Eigenzuständen und den lokalen d -Orbitalen mit bezüglich der lokalen Achsen gemessenen Spins

ist [3]

$$\begin{pmatrix} \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \\ \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \\ \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle \\ \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \\ \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \\ \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} \left| yz, \uparrow \right\rangle \\ \left| yz, \downarrow \right\rangle \\ \left| zx, \uparrow \right\rangle \\ \left| zx, \downarrow \right\rangle \\ \left| xy, \uparrow \right\rangle \\ \left| xy, \downarrow \right\rangle \end{pmatrix}. \quad (\text{A.22})$$

Die ersten beiden Zeilen der Transformationsmatrix M sind durch die Koeffzienten aus Gleichung (1.17) gegeben. Wir betrachten Hüpfprozesse zwischen den Tetraederpunkten 0 (Ausgangsatom) und 1 (Ziel). Die entsprechenden Werte für (l, m, n) müssen in die Gleichungen (A.7) bis (A.21) eingesetzt werden, das Resultat sei H_{10} . Die Rotationen von den beiden lokalen Koordinatensystemen in das global definierte wird durch zwei Rotationsmatrizen aus Gleichung (A.6) beschrieben. Die vollständige Matrizenmultiplikation, die die Hüpfmatrix zwischen lokalen Spin-Orbit-Eigenzuständen liefert, hat dann die Form

$$H_{10}^{\text{SOC}} = (M^*)^T \left[(R_1^T H_{10} R_0) \otimes ((D^{(1)})^\dagger D^{(0)}) \right] M. \quad (\text{A.23})$$

Wir geben die einzelnen Schritte nochmals an: Die lokalen d -Orbitale werden ins globale Koordinatensystem gedreht. In diesem Koordinatensystem kann die Hüpfmatrix aus den Gleichungen (A.7) bis (A.21) konstruiert werden. Die Spins werden mitgedreht, um in die lokalen Spin-Orbit-Eigenzustände wechseln zu können. Da nur die $J_{\text{eff}} = 1/2$ -Mannigfaltigkeit berücksichtigt werden soll, brauchen wir nur vier Einträge aus H_{10}^{SOC} , die die auf den entsprechenden Unterraum projizierte Matrix H_{10}^{proj} bilden. Innerhalb dieses Unterraums drehen wir die Spinoren um das Hüpfen zwischen Spin-Orbit-Eigenzuständen in einer globalen Basis formulieren zu können:

$$H_{10}^{\text{glob}} = D^{(1)} H_{10}^{\text{proj}} (D^{(0)})^\dagger. \quad (\text{A.24})$$

A.2 Programmdetails und Methoden im Vergleich

Hier soll kurz auf Details der Programme eingegangen werden. Zur Diagonalisierung der Bloch-Matrizen wird die Routine ZHEEV aus der Bibliothek LAPACK verwendet [81]. Diese gibt sowohl die Energieniveaus, als auch optional die Eigenvektoren zurück, die für die Iterationen oder für die Verwendung von Minimierungs Routinen mit Benutzung der Ableitung gebraucht werden. Für die Nullstellensuche zur Bestimmung des chemischen Potentials, sowie zur Minimierung der freien Energie werden in der GNU Scientific Library [82] implementierte Methoden genutzt. Ob die Mean-Field-Parameter iterativ oder durch Minimieren

der freien Energie effektiver bestimmt werden, hängt auch von der Phase ab, die untersucht wird. In der isolierenden Phase können für die Minimierung der freien Energie effiziente Methoden genutzt werden, die den Gradienten berücksichtigen, etwa die *conjugate gradient*-Methode. Die kritische Stelle bei der Nutzung dieser Methode ist die Ableitung des chemischen Potentials nach den Mean-Field-Parametern, etwa $\partial\mu/\partial n_\uparrow$, da diese Größe nicht analytisch bekannt ist. Es ergibt wenig Sinn, diese Größen numerisch zu bestimmen, da man dadurch den entscheidenden Vorteil der Methoden unterläuft. Für Isolatoren verschwinden aber die Ausdrücke, mit denen diese inneren Ableitungen multipliziert werden, exponentiell mit der Bandlücke. Die Methoden sind also effektiv in der isolierenden AIAO-Phase, aber funktionieren nicht in der WSM-Phase. Dort muss auf Minimierungsroutinen ohne Benutzung der Ableitung zurückgegriffen werden. Das ist langsamer, als die selbstkonsistente Bestimmung über die Iterationen. Bei der Integrationsroutine ist darauf zu achten, dass möglichst wenige Funktionsaufrufe stattfinden sollten, da jeder einzelne mindestens mit der Diagonalisierung einer 8×8 -Matrix verbunden ist. Wenn Erwartungswerte berechnet werden sollen, müssen zusätzlich noch die Eigenvektoren berechnet werden. Um die Anzahl an Funktionsaufrufen gering zu halten wird die Implementierung eines deterministischen, adaptiven Algorithmus [83] in der Routine CUHRE aus der Bibliothek CUBA genutzt [84]. In jedem Iterationsschritt wird ein großer zeitlicher Aufwand dazu gebraucht, das chemische Potential zu berechnen. Für die damit verbundene Nullstellensuche muss in jedem Iterationsschritt ein Integral berechnet werden. Deshalb kann es sinnvoll sein, das chemische Potential nicht in jedem Schritt mit voller Genauigkeit zu bestimmen. In der Regel konvergieren die Iterationen trotzdem. Eine mögliche Umsetzung dieses Gedanken bestünde zum Beispiel darin, verschiedene Genauigkeiten δ_i zu definieren und jeder Genauigkeit eine natürliche Zahl N_i zuzuordnen. Ändert sich der Ordnungsparameter in den einzelnen Iterationsschritten weniger als δ_i , dann werden die nächsten N_i -Schritte ohne Bestimmung des chemischen Potentials bzw. mit Bestimmung des chemischen Potentials, aber mit geringerer Genauigkeit durchgeführt. Hierdurch kann die Konvergenzgeschwindigkeit erheblich verbessert werden.

A.3 Berechnung der Eigenwerte des Paritätsoperators

Nachfolgend werden noch einige Details zu den Berechnungen der Eigenwerte des Paritätsoperators gegeben. Die TRIM werden wie in Tabelle 3.1 abgezählt, die Eigenvektoren des Hamiltonoperators nach aufsteigenden Eigenwerten. Das

Inversionszentrum liege im Ursprung. \mathcal{P}_1 hat dann die Form

$$\mathcal{P}_1 = \text{diag} (1, 1, -1, -1, 1, 1, 1, 1). \quad (\text{A.25})$$

Die nummerisch berechneten Eigenvektoren $\mathbf{v}_1, \mathbf{v}_2, \mathbf{v}_3, \mathbf{v}_4, \mathbf{v}_7$ und \mathbf{v}_8 haben alle die Form

$$\mathbf{v}_i = a_i \hat{\mathbf{e}}_1 + b_i \hat{\mathbf{e}}_2 + c_i \hat{\mathbf{e}}_5 + d_i \hat{\mathbf{e}}_6 + f_i \hat{\mathbf{e}}_7 + g_i \hat{\mathbf{e}}_8. \quad (\text{A.26})$$

Sie liegen im Eigenraum des Paritätoperators zum Eigenwert 1. Bei Γ_1 haben die Kramers-Paare 1, 2 und 4 gerade Parität. Für die Punkte $\Gamma_0, \Gamma_2, \Gamma_3$ und Γ_7 argumentiert man analog. Bei Γ_4, Γ_5 und Γ_6 sind alle Energien vierfach entartet und die numerische Rechnung liefert also Linearkombinationen aus jeweils zwei Kramers-Paaren. Die beiden Kramers-Paare müssen unterschiedliche Parität haben. Zur Veranschaulichung betrachten wir Γ_4 . Der Paritätsoperator lautet

$$\mathcal{P}_4 = \text{diag} (1, 1, 1, 1, -1, -1, -1, -1). \quad (\text{A.27})$$

Die vier Eigenvektoren zum niedrigeren Energieeigenwert sind Linearkombinationen aller acht Basisvektoren. Sie enthalten Anteile der Vektoren aus dem Unterraum zum Eigenwert 1 und zum Eigenwert -1 des Paritätoperators. Betrachtet man die Anteile der Eigenvektoren separat nach ihrer Zugehörigkeit zu den Eigenräumen von \mathcal{P} , dann zeigt sich, dass nur zwei der entstehenden vierkomponentigen Vektoren linear unabhängig sind. Zudem ist es möglich, aus den numerisch berechneten Eigenvektoren Linearkombinationen so zu bilden, dass je zwei Vektoren in den unterschiedlichen Eigenräumen von \mathcal{P} liegen. Die numerisch berechneten Eigenvektoren setzen sich also aus Kramers-Paaren unterschiedlicher Parität zusammen. In Tabelle 3.1 wird dies durch \pm und \mp dargestellt. Entscheidend ist, dass das Produkt $\xi_0 \xi_2$ ungerade ist.

A.4 Der Hamiltonoperator des endlichen Festkörpers

In diesem Anhang werden Details zur Konstruktion der Bloch-Matrix aus Abschnitt 3.3.1 gegeben. Es folgt eine ausführlichere Diskussion der Geometrie des Festkörpers mit Oberflächen senkrecht zur (001)-Richtung.

Hüpfprozesse zwischen zwei Schichten l und l' werden durch einen 8×8 -großen Ausschnitt des Hamiltonoperators beschrieben. Dieser hängt nicht von l und l' , sondern lediglich von ihrer Differenz Δl ab. Wie viele verschiedene solcher 8×8 -Matrizen gibt es? Gleichung (3.34) entnehmen wir, dass die möglichen Werte für

Δl auf die Menge $\{-2, -1, 0, 1, 2\}$ beschränkt sind. Für indirekte NN-Prozesse von 0 nach 2 gilt etwa $\Delta l = -2$ und für Prozesse von 3 nach 0 ist $\Delta l = 1$. Auf Grund der Hermitizität der Matrix $\mathcal{H}(\mathbf{k})$ sind die 8×8 -großen Ausschnitte für $\Delta l = -2$ und $\Delta l = 2$ sowie für $\Delta l = -1$ und $\Delta l = 1$ nicht unabhängig voneinander. Lediglich drei 8×8 -Matrizen bestimmen also $\mathcal{H}(\mathbf{k})$. Mit den Ergebnissen aus Gleichung (3.35), (3.34) und (3.29) finden wir diese leicht. Wir nennen die Matrix, die Hüpfprozesse von l nach $l + 1$ beschreibt, L^+ und wählen eine äquivalente Notation für die anderen Matrizen. Dann hat die Bloch-Matrix insgesamt die Form:

$$\mathcal{H} = \left(\begin{array}{ccccccccc} L & L^- & L^{--} & 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 & 0 & L^{++} & L^+ \\ L^+ & L & L^- & L^{--} & & & \ddots & & & 0 & L^{++} \\ L^{++} & L^+ & L & L^- & & & & & & & 0 \\ 0 & L^{++} & L^+ & L & & & & & & & 0 \\ 0 & & L^{++} & L^+ & & & & & & & \vdots \\ 0 & & & L^{++} & & & & & & & 0 \\ \vdots & & & & L^{++} & & & & & & 0 \\ 0 & & & & & L^{++} & & & & & 0 \\ 0 & & & & & & L^{--} & L^{--} & 0 & & \\ 0 & & & & & & L^- & L^- & L^{--} & & \\ L^{--} & 0 & & & & & L^+ & L & L^- & & \\ L^- & L^{--} & 0 & 0 & \cdots & 0 & 0 & 0 & L^{++} & L^+ & L \end{array} \right). \quad (\text{A.28})$$

Die erste Spalte beschreibt Hüpfprozesse, die in der untersten Schicht beginnen. Die Randbedingungen äußern sich darin, dass die Matrizen L^{--} und L^- in dieser Spalte eigentlich nicht auftauchen, weil Hüpfprozesse mangels vorhandener Schichten unterhalb nur in obere Schichten stattfinden. Im Ausdruck (A.28) stehen aber tatsächlich in den rot unterlegten Bereichen die Matrizen L^{--} und L^- . Diese beschreiben Hüpfprozesse von den untersten beiden Schichten in die obersten beiden Schichten und implementieren damit periodische Randbedingungen. Für die Berechnung der Fermi-Arcs stehen an ihrer Stelle nur Nullen. Die Korrektheit der Gleichung (A.28) kann aber durch Vergleich des Spektrums mit periodischen Randbedingungen mit dem Spektrum des durch Gleichung 2.39 beschriebenen Festkörpers überprüft werden. Projiziert man dieses Spektrum auf die Oberflächen-Brillouin-Zone – lässt also nur die durch die Schichtanzahl erlaubten Werte für \mathbf{k}_\perp zu – dann reproduziert man gerade das Spektrum des endlichen

Festkörpers mit periodischen Randbedingungen.

Den Festkörper aus Schichten senkrecht zu (001) konstruiert man genauso. Die Gleichungen (3.40) lösen wir nach den Vektoren \mathbf{a}_i auf und setzen das Resultat in Gleichung (1.21) ein. Für indirekte NN-Hüpfprozesse von j nach i ändert sich der Bravais-Gitterpunkt von $\mathbf{R} = ls + mt_1 + nt_2$ zu

$$\mathbf{R}' = (l + \delta_{1j} - \delta_{1i} + \delta_{2j} - \delta_{2i})\mathbf{s} + (\delta_{3j} - \delta_{3i})\mathbf{t}_1 + (\delta_{1i} - \delta_{1j})\mathbf{t}_2. \quad (\text{A.29})$$

Auch hier können wir l' direkt als den Koeffizienten vor \mathbf{s} identifizieren. Wiederum steht \mathbf{s} nicht senkrecht auf der Oberfläche des Festkörpers und wir müssen in diese Ebene projizieren, um das korrekte $\Delta\mathbf{R}_{\parallel}$ aus Gleichung (3.29) zu erhalten. Wir bekommen

$$\Delta\mathbf{R}_{\parallel} = (\delta_{1j} - \delta_{1i} + \delta_{2j} - \delta_{2i})\mathbf{s}_{\text{proj}} + (\delta_{3j} - \delta_{3i})\mathbf{t}_1 + (\delta_{1i} - \delta_{1j})\mathbf{t}_2, \quad (\text{A.30})$$

mit $\mathbf{s}_{\text{proj}} = 2\hat{\mathbf{e}}_x$. Für NNN-Hüpfprozesse bekommen wir wieder Gleichungen derselben Struktur mit Ersetzung von j , respektive i durch c . Im Unterschied zu Gleichung (3.34) ändert sich der Schichtindex gemäß Gleichung (A.29) höchstens um eins, Hüpfprozesse in die übernächste Schicht sind nicht möglich. Dies ist wiederum konsistent mit der Beobachtung, dass bereits die zweite Schicht volle Koordinationszahl hat. Für die Konstruktion der Matrix \mathcal{H} aus 8×8 -großen Ausschnitten müssen also lediglich drei solcher Matrizen, L^+ , L und L^- , gefunden werden. Auf Grund der Hermitizität des Hamiltonoperators müssen lediglich L und L^+ berechnet werden. Das Resultat hat die Form von Gleichung (A.28), wobei L^{++} und L^{--} jeweils durch Nullmatrix ersetzt werden müssen. Erneut nutzen wir periodische Randbedingungen zur Überprüfung der Korrektheit der aufgestellten Matrix.

A.5 Konstruktion des Hamiltonoperators für CDW

Dieser Anhang enthält einige Details zur Konstruktion der Hamiltonoperatoren, die Ladungsdichtewellen zulassen. Zunächst wird die Konstruktion des NNN-Hamiltonoperators für die (001)-Richtung aus Abschnitt 3.5.1 diskutiert, anschließend der Hamiltonoperator aus Abschnitt 3.5.2.

Für Hüpfprozesse zwischen übernächsten Nachbarn übernimmt der gemeinsame nächste Nachbar c in den relevanten Gleichungen die Rolle von i oder j , je nachdem ob indirekte oder direkte Prozesse betrachtet werden. Die Aufteilung der Hüpfprozesse zwischen alten Basispositionen in die Hüpfprozesse zwischen den neuen ergibt sich mit den Gleichungen (1.23) und (1.24). Alle Einträge des Hamil-

	0	1	2	3
0		$\mathcal{H}_{10}^{2d} + \mathcal{H}_{10}^{3i}$	$\mathcal{H}_{20}^{1d} + \mathcal{H}_{20}^{3i}$	
1	$\mathcal{H}_{01}^{3d} + \mathcal{H}_{01}^{2i}$			$\mathcal{H}_{31}^{0d} + \mathcal{H}_{31}^{2i}$
2	$\mathcal{H}_{02}^{3d} + \mathcal{H}_{02}^{1i}$			$\mathcal{H}_{32}^{0d} + \mathcal{H}_{32}^{1i}$
3		$\mathcal{H}_{13}^{2d} + \mathcal{H}_{13}^{0i}$	$\mathcal{H}_{23}^{1d} + \mathcal{H}_{23}^{0i}$	
	4	5	6	7
0				$\mathcal{H}_{30}^{1d} + \mathcal{H}_{30}^{2d}$
1	$\mathcal{H}_{01}^{2d} + \mathcal{H}_{01}^{3i}$		$\mathcal{H}_{21}^{3i} + \mathcal{H}_{21}^{0i}$	$\mathcal{H}_{31}^{2d} + \mathcal{H}_{31}^{0i}$
2	$\mathcal{H}_{02}^{1d} + \mathcal{H}_{02}^{3i}$	$\mathcal{H}_{12}^{0i} + \mathcal{H}_{12}^{3i}$		$\mathcal{H}_{31}^{2d} + \mathcal{H}_{31}^{0i}$
3	$\mathcal{H}_{03}^{1d} + \mathcal{H}_{03}^{2d}$			

Tabelle A.2: Aufteilung der NNN-Hüpfprosesse zwischen den Positionen 0 bis 3 in Hüpfprozesse zwischen allen Positionen der erweiterten Einheitszelle. Die Positionen 4 bis 7 entsprechen den um einen Vektor \mathbf{a}_1^0 verschobenen Positionen 0 bis 3. Zeilenweise stehen die Ausgangspositionen.

tonoperators folgen aus Kenntnis der Hüpfprozesse für eine Einheitszelle aus zwei Tetraedern. Dabei entsprechen die Ausdrücke $\mathcal{H}_{ij}^{c,d}$ den Fourier-transformierten Hüpfelementen für direkte NNN-Prozesse von j nach i mit gemeinsamen nächstem Nachbarn c , also den ersten Summanden in der vorletzten Zeile aus Gleichung (2.36). $\mathcal{H}_{ij}^{c,id}$ ist das indirekte Hüpfelment. Man beachte, dass in dem rechten Teil der Tabelle für lediglich zwei Tetraeder pro Einheitszelle noch insgesamt 16 Hüpfmatrixelemente hinzukommen, weil dann jedes Tetraeder zwischen zwei Tetraedern mit identischen Basispositionen liegt.

Nachfolgend soll detaillierter diskutiert werden, wie sich die Matrixelemente des Hamiltonoperators, der Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung zulässt, im Gegensatz zu den Gleichungen (2.34) und (2.36) verändern. Um herauszufinden, welche Hüpfmatrixelemente $j \rightarrow i$ für die neue Einheitszelle in Hüpfprozesse $j \rightarrow i$ und $j \rightarrow i \pm 4$ aufspalten, wird nach Auflösen von Gleichung (3.50) nach den alten Gittervektoren und Einsetzen in Gleichung (1.21) der neue Koeffizient vor dem Vektor \mathbf{a}_3^0 betrachtet. Dieser lautet

$$\delta_{\mathbf{a}_3} = \delta_{1j} - \delta_{1i} + \delta_{2j} - \delta_{2i} + \delta_{3j} - \delta_{3i}. \quad (\text{A.31})$$

Daraus ergibt sich Tabelle A.3a. Es gelten die gleichen Bemerkungen wie in Abschnitt 3.5.2. Für die Hüpfprozesse zwischen übernächsten Nachbarn nutzt man wieder die Gleichungen (1.23) und (1.23). Es ergibt sich Tabelle A.3b.

	0	1	2	3	4	5	6	7
0		\mathcal{H}_{10}^d	\mathcal{H}_{20}^d	\mathcal{H}_{30}^d		\mathcal{H}_{10}^{id}	\mathcal{H}_{20}^{id}	\mathcal{H}_{30}^{id}
1	\mathcal{H}_{01}^d		\mathcal{H}_{21}	\mathcal{H}_{31}	\mathcal{H}_{01}^{id}			
2	\mathcal{H}_{02}^d	\mathcal{H}_{12}		\mathcal{H}_{32}	\mathcal{H}_{02}^{id}			
3	\mathcal{H}_{03}^d	\mathcal{H}_{13}	\mathcal{H}_{23}		\mathcal{H}_{03}^{id}			

- a** Aufteilung der NNN-Hüpfprozesse zwischen den Positionen 0 bis 3 in Hüpfprozesse zwischen allen Positionen der erweiterten Einheitszelle. Die Positionen 4 bis 7 entsprechen den um einen Vektor \mathbf{a}_3^0 verschobenen Positionen 0 bis 3. Zeilenweise stehen die Ausgangspositionen.

	0	1	2	3	4	5	6	7
0		$\mathcal{H}_{10}^{2d} + \mathcal{H}_{10}^{3d}$	$\mathcal{H}_{20}^{1d} + \mathcal{H}_{20}^{3d}$	$\mathcal{H}_{30}^{2d} + \mathcal{H}_{30}^{1d}$				
1	$\mathcal{H}_{01}^{3i} + \mathcal{H}_{01}^{2i}$		\mathcal{H}_{21}^3	\mathcal{H}_{31}^2	$\mathcal{H}_{01}^{2d} + \mathcal{H}_{01}^{3d}$		\mathcal{H}_{21}^{0i}	\mathcal{H}_{31}^{0i}
2	$\mathcal{H}_{02}^{3i} + \mathcal{H}_{02}^{1i}$	\mathcal{H}_{12}^3		\mathcal{H}_{32}^1	$\mathcal{H}_{02}^{1d} + \mathcal{H}_{02}^{3d}$	\mathcal{H}_{12}^{0i}		\mathcal{H}_{31}^{0i}
3	$\mathcal{H}_{03}^{1i} + \mathcal{H}_{03}^{2i}$	\mathcal{H}_{13}^2	\mathcal{H}_{23}^1		$\mathcal{H}_{03}^{1d} + \mathcal{H}_{03}^{2d}$	\mathcal{H}_{13}^{0i}	\mathcal{H}_{23}^{0i}	

- b** Aufteilung der NNN-Hüpfprozesse zwischen den Positionen 0 bis 3 in Hüpfprozesse zwischen allen Positionen der erweiterten Einheitszelle. Die Positionen 4 bis 7 entsprechen den um einen Vektor \mathbf{a}_3^0 verschobenen Positionen 0 bis 3. Zeilenweise stehen die Ausgangspositionen.

Tabelle A.3: Struktur des Hamiltonoperators, der Ladungsdichtewellen in (111)-Richtung erlaubt.

B Literaturverzeichnis

- [1] W. Witczak-Krempa, G. Chen, Y. B. Kim, and L. Balents, “Correlated Quantum Phenomena in the Strong Spin-Orbit Regime,” *Annual Review of Condensed Matter Physics*, vol. 5, no. 1, pp. 57–82, 2014.
- [2] C. L. Kane and E. J. Mele, “Quantum Spin Hall Effect in Graphene,” *Physical Review Letters*, vol. 95, p. 226801, Nov. 2005.
- [3] D. Pesin and L. Balents, “Mott physics and band topology in materials with strong spin-orbit interaction,” *Nature Physics*, vol. 6, pp. 376–381, May 2010.
- [4] X. Wan, A. M. Turner, A. Vishwanath, and S. Y. Savrasov, “Topological semimetal and Fermi-arc surface states in the electronic structure of pyrochlore iridates,” *Physical Review B*, vol. 83, p. 205101, May 2011.
- [5] M. Subramanian, G. Aravamudan, and G. Subba Roa, “Oxide pyrochlores - a review,” *Progress in Solid State Chemistry*, vol. 15, pp. 55–143, 1983.
- [6] J. Pannetier and J. Lucas, “Nouvelle description de la structure pyrochlore le compose Cd₂Nb₂O₆S,” *Materials Research Bulletin*, vol. 5, pp. 797–805, Sept. 1970.
- [7] J. S. Gardner, M. J. P. Gingras, and J. E. Greedan, “Magnetic pyrochlore oxides,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 82, pp. 53–107, Jan. 2010.
- [8] C. J. Ballhausen, *Introduction to ligand field theory*. McGraw-Hill series in advanced chemistry, New York [u.a.]: McGraw-Hill Book Comp., 1962.
- [9] M. Böhm, *Symmetrien in Festkörpern / gruppentheoretische Grundlagen und Anwendungen*. Lehrbuch Physik, Berlin: Wiley-VCH, 2002.

- [10] B. Bleaney and A. Abragam, *Electron paramagnetic resonance of transition ions*. The international series of monographs on physics, Oxford: Oxford Univ. Press, 2012.
- [11] E. K.-H. Lee, S. Bhattacharjee, and Y. B. Kim, “Magnetic excitation spectra in pyrochlore iridates,” *Physical Review B*, vol. 87, p. 214416, June 2013.
- [12] G. Chen and M. Hermele, “Magnetic orders and topological phases from f - d exchange in pyrochlore iridates,” *Physical Review B*, vol. 86, p. 235129, Dec. 2012.
- [13] H. Shinaoka, Y. Motome, T. Miyake, and S. Ishibashi, “Spin-orbital frustration in molybdenum pyrochlores $A_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ (A = rare earth),” *Physical Review B*, vol. 88, p. 174422, Nov. 2013.
- [14] B.-J. Yang and Y. B. Kim, “Topological insulators and metal-insulator transition in the pyrochlore iridates,” *Physical Review B*, vol. 82, p. 085111, Aug. 2010.
- [15] B. J. Kim, H. Jin, S. J. Moon, J.-Y. Kim, B.-G. Park, C. S. Leem, J. Yu, T. W. Noh, C. Kim, S.-J. Oh, J.-H. Park, V. Durairaj, G. Cao, and E. Rotenberg, “Novel $j_{\text{eff}} = 1/2$ mott state induced by relativistic spin-orbit coupling in Sr_2IrO_4 ,” *Physical Review Letters*, vol. 101, p. 076402, Aug. 2008.
- [16] B. J. Kim, H. Ohsumi, T. Komesu, S. Sakai, T. Morita, H. Takagi, and T. Arima, “Phase-Sensitive Observation of a Spin-Orbital Mott State in Sr_2IrO_4 ,” *Science*, vol. 323, pp. 1329–1332, Mar. 2009.
- [17] K. v. Klitzing, G. Dorda, and M. Pepper, “New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance,” *Physical Review Letters*, vol. 45, pp. 494–497, Aug. 1980.
- [18] S. Ryu, A. P. Schnyder, A. Furusaki, and A. W. W. Ludwig, “Topological insulators and superconductors: tenfold way and dimensional hierarchy,” *New Journal of Physics*, vol. 12, no. 6, p. 065010, 2010.
- [19] A. Kitaev, “Periodic table for topological insulators and superconductors,” *arXiv:0901.2686 [cond-mat, physics:hep-th, physics:math-ph]*, pp. 22–30, 2009. arXiv: 0901.2686.
- [20] M. Z. Hasan and C. L. Kane, “Colloquium : Topological insulators,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 82, pp. 3045–3067, Nov. 2010.
- [21] X.-L. Qi and S.-C. Zhang, “Topological insulators and superconductors,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 83, pp. 1057–1110, Oct. 2011.

- [22] M. Nakahara, *Differentialgeometrie, Topologie und Physik*. Berlin ; Heidelberg: Springer Spektrum, 2015.
- [23] M. V. Berry, “Quantal Phase Factors Accompanying Adiabatic Changes,” *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 392, pp. 45–57, Mar. 1984.
- [24] D. Xiao, M.-C. Chang, and Q. Niu, “Berry phase effects on electronic properties,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 82, pp. 1959–2007, July 2010.
- [25] G. Sundaram and Q. Niu, “Wave-packet dynamics in slowly perturbed crystals: Gradient corrections and Berry-phase effects,” *Physical Review B*, vol. 59, pp. 14915–14925, June 1999.
- [26] D. J. Thouless, M. Kohmoto, M. P. Nightingale, and M. den Nijs, “Quantized Hall Conductance in a Two-Dimensional Periodic Potential,” *Physical Review Letters*, vol. 49, pp. 405–408, Aug. 1982.
- [27] J. E. Avron, R. Seiler, and B. Simon, “Homotopy and Quantization in Condensed Matter Physics,” *Physical Review Letters*, vol. 51, pp. 51–53, July 1983.
- [28] R. B. Laughlin, “Quantized Hall conductivity in two dimensions,” *Physical Review B*, vol. 23, pp. 5632–5633, May 1981.
- [29] T. L. Hughes and A. Bernevig, *Topological insulators and topological superconductors* /. Princeton [u.a.]: Princeton University Press, 2013.
- [30] F. D. M. Haldane, “Model for a Quantum Hall Effect without Landau Levels: Condensed-Matter Realization of the ”Parity Anomaly”,” *Physical Review Letters*, vol. 61, no. 18, pp. 2015–2018, 1988.
- [31] C. L. Kane and E. J. Mele, “ Z_2 Topological Order and the Quantum Spin Hall Effect,” *Physical Review Letters*, vol. 95, p. 146802, Sept. 2005.
- [32] L. Fu, C. L. Kane, and E. J. Mele, “Topological Insulators in Three Dimensions,” *Physical Review Letters*, vol. 98, p. 106803, Mar. 2007.
- [33] J. E. Moore and L. Balents, “Topological invariants of time-reversal-invariant band structures,” *Physical Review B*, vol. 75, p. 121306, Mar. 2007.
- [34] L. Fu and C. L. Kane, “Topological insulators with inversion symmetry,” *Physical Review B*, vol. 76, p. 045302, July 2007.

- [35] F. Zhang, C. L. Kane, and E. J. Mele, “Surface states of topological insulators,” *Physical Review B*, vol. 86, p. 081303, Aug. 2012.
- [36] H. Weyl, “Gravitation and the electron,” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, vol. 15, pp. 323–334, Apr. 1929.
- [37] S.-Y. Xu, I. Belopolski, N. Alidoust, M. Neupane, G. Bian, C. Zhang, R. Sankar, G. Chang, Z. Yuan, C.-C. Lee, S.-M. Huang, H. Zheng, J. Ma, D. S. Sanchez, B. Wang, A. Bansil, F. Chou, P. P. Shibayev, H. Lin, S. Jia, and M. Z. Hasan, “Discovery of a Weyl Fermion semimetal and topological Fermi arcs,” *Science*, p. aaa9297, July 2015.
- [38] A. M. Turner and A. Vishwanath, “Beyond Band Insulators: Topology of Semi-metals and Interacting Phases,” *arXiv:1301.0330 [cond-mat]*, Jan. 2013. arXiv: 1301.0330.
- [39] A. A. Burkov, M. D. Hook, and L. Balents, “Topological nodal semimetals,” *Physical Review B*, vol. 84, p. 235126, Dec. 2011.
- [40] H. B. Nielsen and M. Ninomiya, “Absence of neutrinos on a lattice,” *Nuclear Physics B*, vol. 185, pp. 20–40, July 1981.
- [41] H. B. Nielsen and M. Ninomiya, “Absence of neutrinos on a lattice,” *Nuclear Physics B*, vol. 193, pp. 173–194, Dec. 1981.
- [42] P. Delplace, J. Li, and D. Carpentier, “Topological Weyl semi-metal from a lattice model,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 97, no. 6, p. 67004, 2012.
- [43] C.-Z. Chen, J. Song, H. Jiang, Q.-f. Sun, Z. Wang, and X. Xie, “Disorder and Metal-Insulator Transitions in Weyl Semimetals,” *Physical Review Letters*, vol. 115, p. 246603, Dec. 2015.
- [44] P. Hořava, “Stability of Fermi Surfaces and K Theory,” *Physical Review Letters*, vol. 95, p. 016405, June 2005.
- [45] G. E. Volovik, *The Universe in a Helium Droplet*. Oxford: Oxford University Press, Feb. 2009.
- [46] P. Hosur and X. Qi, “Recent developments in transport phenomena in Weyl semimetals,” *Comptes Rendus Physique*, vol. 14, pp. 857–870, Nov. 2013.
- [47] A. A. Burkov and L. Balents, “Weyl Semimetal in a Topological Insulator Multilayer,” *Physical Review Letters*, vol. 107, p. 127205, Sept. 2011.

- [48] P. Hosur, “Friedel oscillations due to Fermi arcs in Weyl semimetals,” *Physical Review B*, vol. 86, p. 195102, Nov. 2012.
- [49] H. B. Nielsen and M. Ninomiya, “The Adler-Bell-Jackiw anomaly and Weyl fermions in a crystal,” *Physics Letters B*, vol. 130, pp. 389–396, Nov. 1983.
- [50] S.-M. Huang, S.-Y. Xu, I. Belopolski, C.-C. Lee, G. Chang, B. Wang, N. Alidoust, G. Bian, M. Neupane, C. Zhang, S. Jia, A. Bansil, H. Lin, and M. Z. Hasan, “A Weyl Fermion semimetal with surface Fermi arcs in the transition metal monopnictide TaAs class,” *Nature Communications*, vol. 6, p. 7373, June 2015.
- [51] H. Weng, C. Fang, Z. Fang, B. A. Bernevig, and X. Dai, “Weyl Semimetal Phase in Noncentrosymmetric Transition-Metal Monophosphides,” *Physical Review X*, vol. 5, p. 011029, Mar. 2015.
- [52] Z. K. Liu, L. X. Yang, Y. Sun, T. Zhang, H. Peng, H. F. Yang, C. Chen, Y. Zhang, Y. F. Guo, D. Prabhakaran, M. Schmidt, Z. Hussain, S.-K. Mo, C. Felser, B. Yan, and Y. L. Chen, “Evolution of the Fermi surface of Weyl semimetals in the transition metal pnictide family,” *Nature Materials*, vol. 15, pp. 27–31, Jan. 2016.
- [53] J. Klotz, S.-C. Wu, C. Shekhar, Y. Sun, M. Schmidt, M. Nicklas, M. Baenitz, M. Uhlarz, J. Wosnitza, C. Felser, and B. Yan, “Quantum oscillations and the Fermi surface topology of the Weyl semimetal NbP,” *Physical Review B*, vol. 93, p. 121105, Mar. 2016.
- [54] C. Shekhar, A. K. Nayak, Y. Sun, M. Schmidt, M. Nicklas, I. Leermakers, U. Zeitler, Y. Skourski, J. Wosnitza, Z. Liu, Y. Chen, W. Schnelle, H. Borrman, Y. Grin, C. Felser, and B. Yan, “Extremely large magnetoresistance and ultrahigh mobility in the topological Weyl semimetal candidate NbP,” *Nature Physics*, vol. 11, pp. 645–649, Aug. 2015.
- [55] F. Arnold, C. Shekhar, S.-C. Wu, Y. Sun, R. D. dos Reis, N. Kumar, M. Naumann, M. O. Ajeesh, M. Schmidt, A. G. Grushin, J. H. Bardarson, M. Baenitz, D. Sokolov, H. Borrman, M. Nicklas, C. Felser, E. Hassinger, and B. Yan, “Negative magnetoresistance without well-defined chirality in the Weyl semimetal TaP,” *Nature Communications*, vol. 7, p. 11615, May 2016.
- [56] W. Witczak-Krempa, A. Go, and Y. B. Kim, “Pyrochlore electrons under pressure, heat, and field: Shedding light on the iridates,” *Physical Review B*, vol. 87, p. 155101, Apr. 2013.

- [57] H.-M. Guo and M. Franz, “Three-Dimensional Topological Insulators on the Pyrochlore Lattice,” *Physical Review Letters*, vol. 103, p. 206805, Nov. 2009.
- [58] M. Kurita, Y. Yamaji, and M. Imada, “Topological Insulators from Spontaneous Symmetry Breaking Induced by Electron Correlation on Pyrochlore Lattices,” *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 80, p. 044708, Apr. 2011.
- [59] J. C. Slater and G. F. Koster, “Simplified LCAO Method for the Periodic Potential Problem,” *Physical Review*, vol. 94, pp. 1498–1524, June 1954.
- [60] Y. Claveau, B. Arnaud, and S. D. Matteo, “Mean-field solution of the Hubbard model: the magnetic phase diagram,” *European Journal of Physics*, vol. 35, no. 3, p. 035023, 2014.
- [61] W. Witczak-Krempa and Y. B. Kim, “Topological and magnetic phases of interacting electrons in the pyrochlore iridates,” *Physical Review B*, vol. 85, p. 045124, Jan. 2012.
- [62] A. Go, W. Witczak-Krempa, G. S. Jeon, K. Park, and Y. B. Kim, “Correlation Effects on 3d Topological Phases: From Bulk to Boundary,” *Physical Review Letters*, vol. 109, p. 066401, Aug. 2012.
- [63] H. Shinaoka, S. Hoshino, M. Troyer, and P. Werner, “Phase Diagram of Pyrochlore Iridates: All-in-All-out Magnetic Ordering and Non-Fermi-Liquid Properties,” *Physical Review Letters*, vol. 115, p. 156401, Oct. 2015.
- [64] H. Guo, K. Matsuhira, I. Kawasaki, M. Wakushima, Y. Hinatsu, I. Watanabe, and Z.-a. Xu, “Magnetic order in the pyrochlore iridate $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ probed by muon spin relaxation,” *Physical Review B*, vol. 88, p. 060411, Aug. 2013.
- [65] E.-G. Moon, C. Xu, Y. B. Kim, and L. Balents, “Non-Fermi-Liquid and Topological States with Strong Spin-Orbit Coupling,” *Physical Review Letters*, vol. 111, p. 206401, Nov. 2013.
- [66] J. M. Luttinger, “Quantum Theory of Cyclotron Resonance in Semiconductors: General Theory,” *Physical Review*, vol. 102, no. 4, pp. 1030–1041, 1956.
- [67] M. Elhajal, B. Canals, R. Sunyer, and C. Lacroix, “Ordering in the pyrochlore antiferromagnet due to Dzyaloshinsky-Moriya interactions,” *Physical Review B*, vol. 71, p. 094420, Mar. 2005.
- [68] T. Moriya, “Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism,” *Physical Review*, vol. 120, pp. 91–98, Oct. 1960.

- [69] I. Dzyaloshinsky, “A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics,” *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 4, pp. 241–255, Jan. 1958.
- [70] A. A. Soluyanov, D. Gresch, Z. Wang, Q. Wu, M. Troyer, X. Dai, and B. A. Bernevig, “Type-II Weyl semimetals,” *Nature*, vol. 527, pp. 495–498, Nov. 2015.
- [71] T. Bzdušek, A. Rüegg, and M. Sigrist, “Weyl semimetal from spontaneous inversion symmetry breaking in pyrochlore oxides,” *Physical Review B*, vol. 91, p. 165105, Apr. 2015.
- [72] R. Okugawa and S. Murakami, “Dispersion of Fermi arcs in Weyl semimetals and their evolutions to Dirac cones,” *Physical Review B*, vol. 89, p. 235315, June 2014.
- [73] H. Fukazawa and Y. Maeno, “Filling Control of the Pyrochlore Oxide $\text{Y}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$,” *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 71, pp. 2578–2579, Oct. 2002.
- [74] G. Jackeli and G. Khaliullin, “Mott Insulators in the Strong Spin-Orbit Coupling Limit: From Heisenberg to a Quantum Compass and Kitaev Models,” *Physical Review Letters*, vol. 102, p. 017205, Jan. 2009.
- [75] R. Peierls, “Zur Theorie der elektrischen und thermischen Leitfähigkeit von Metallen,” *Annalen der Physik*, vol. 396, pp. 121–148, Jan. 1930.
- [76] G. Grüner, “The dynamics of charge-density waves,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 60, pp. 1129–1181, Oct. 1988.
- [77] G. Grüner, *Density waves in solids /*, vol. 89 of *Frontiers in physics* ; 89. Cambridge, Mass.: Perseus Publ., 2000.
- [78] Z. Wang and S.-C. Zhang, “Chiral anomaly, charge density waves, and axion strings from Weyl semimetals,” *Physical Review B*, vol. 87, p. 161107, Apr. 2013.
- [79] M. Laubach, C. Platt, R. Thomale, T. Neupert, and S. Rachel, “Density wave instabilities and surface state evolution in interacting Weyl semimetals,” *arXiv:1609.02925 [cond-mat]*, Sept. 2016. arXiv: 1609.02925.
- [80] J. Maciejko and R. Nandkishore, “Weyl semimetals with short-range interactions,” *Physical Review B*, vol. 90, p. 035126, July 2014.

- [81] E. Anderson, Z. Bai, C. Bischof, S. Blackford, J. Demmel, J. Dongarra, J. Du Croz, A. Greenbaum, S. Hammarling, A. McKenney, and D. Sorensen, *LAPACK Users' Guide*. Philadelphia, PA: Society for Industrial and Applied Mathematics, third ed., 1999.
- [82] B. Gough, *GNU Scientific Library Reference Manual - Third Edition*. Network Theory Ltd., 3rd ed., 2009.
- [83] J. Berntsen, T. O. Espelid, and A. Genz, “An Adaptive Algorithm for the Approximate Calculation of Multiple Integrals,” *ACM Trans. Math. Softw.*, vol. 17, pp. 437–451, Dec. 1991.
- [84] T. Hahn, “Cuba—a library for multidimensional numerical integration,” *Computer Physics Communications*, vol. 168, pp. 78–95, June 2005.

Danksagung

There is nothing to writing. All you do is sit down at a typewriter and bleed.

Ernest Hemingway

Im (weitesten) Sinne des obigen Zitats ist in diese Arbeit einiges an Zeit, Mühe und Einsatz geflossen, allerdings bei weitem nicht nur von meiner Seite. Deshalb will ich die Gelegenheit nutzen und all denjenigen danken, die zur Entstehung der Arbeit beigetragen haben.

Mehr als 85 Jahre liegt die Vorhersage masseloser Fermionen durch Hermann Weyl zurück. Als ich mit dieser Arbeit begonnen habe, war ihre Existenz experimentell immer noch nicht bestätigt. Mittlerweile existieren Nachweise der verschiedensten Eigenschaften von Weyl-Semimetalle für unterschiedliche Materialien. Das Glück, so viele fundamentale Fortschritte in einem Forschungsbereich miterleben zu können, zeigt, dass das betrachtete Thema aktueller nicht sein könnte. Deshalb bedanke ich mich herzlich bei Prof. Dr. Carsten Timm für die Möglichkeit, in diesem Gebiet mitarbeiten zu dürfen, und natürlich auch für die ausgezeichnete Betreuung. Prof. Dr. Matthias Vojta hat sich freundlicherweise als Zweitgutachter für diese Arbeit zur Verfügung gestellt. Dafür sei ihm an dieser Stelle ebenfalls herzlich gedankt.

Den Mitgliedern der Arbeitsgruppen „Theorie kondensierter Materie“ und „Theoretischer Festkörperphysik“ danke ich für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die freundliche Aufnahme. Ein besonderes Dankeschön geht dabei an Dr. Paolo Michetti, für zahlreiche wertvolle Hinweise, an Tim Ludwig, für die technische Unterstützung und an Chris Koschenz, für viele Diskussionen über die alltäglichen Probleme der Mean-Field-Theorie.

Mit Abgabe dieser Arbeit endet auch die (reguläre) Studienzeit. Diese wäre nicht so schön gewesen ohne die tatkräftige Mitwirkung von Kili, Marc, Felix, Jannik, Laura, Hans, Benni, Tom, Tobi, Sebastian, Jasko, Henning, Sophia, Malte, Paul und vielen Anderen. Vielen Dank dafür.

Ein großes Dankeschön geht auch an meine Eltern, dafür, dass sie mir das Studium ermöglicht haben und auch für das Korrekturlesen der Arbeit.

Ein ganz besonders großes Dankeschön geht an Johanna.

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Master-Arbeit mit dem Titel *Weyl-Semimetal auf dem Pyrochlordgitter* selbstständig und ohne unzulässige Hilfe Dritter verfasst habe. Es wurden keine anderen als die in der Arbeit angegebenen Hilfsmittel und Quellen benutzt. Die wörtlichen und sinngemäß übernommenen Zitate habe ich als solche kenntlich gemacht. Es waren keine weiteren Personen an der geistigen Herstellung der vorliegenden Arbeit beteiligt. Mir ist bekannt, dass die Nichteinhaltung dieser Erklärung zum nachträglichen Entzug des Hochschulabschlusses führen kann.

Dresden, 29. September 2016

Christoph Berke