

Diss. ETH No. 19902

FIRST-PRINCIPLES SIMULATIONS OF
MULTI-ORBITAL SYSTEMS WITH STRONG
ELECTRONIC CORRELATIONS

A dissertation submitted to

ETH ZURICH

for the degree of
Doctor of Sciences

presented by

Brigitte Surer

Dipl. Phys. ETH
born November 8, 1982

citizen of
Arisdorf BL

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. M. Troyer, examiner
Prof. Dr. S. Biermann, co-examiner
Prof. Dr. P. Werner, co-examiner

2011

ABSTRACT

One of the greatest challenges in theoretical solid state physics is the theory of the electronic properties of materials in the strong correlation regime, which is characterized by the interplay between itinerant and atomic behavior. These atomic-like properties arise as a result of complex multi-orbital interactions as it often concerns materials with partially filled shells and (almost) degenerate orbitals.

Recent efforts to combine model descriptions of strongly correlated electronic systems with Density Functional Theory open the possibility to study their electronic structure from first principles. In this thesis we present such ab-initio calculations for transition metal impurities and transition metal oxides taking into account the full intra-atomic Coulomb interactions.

In a first part we consider impurity problems. We identify multiplet structures in the spectral function of Iron impurities on Sodium and compare these to photoemission spectroscopies. In a study of the multi-orbital Kondo effect of Cobalt impurities in as well as on Cupper we compute the Kondo temperature from first principles.

In a second part we address transition metal oxides, which we treat within the Dynamical Mean Field Approximation. We study the phasediagram of the five band Hubbard model on the Bethe lattice, which serves as a generic model of transition metal oxides and identify magnetic exchange mechanisms. Concerning the transition metal monoxides Nickeloxide and Cobaltoxide we compare different formulations of the on-site interaction and compare our result to photoemission spectroscopies.

ZUSAMMENFASSUNG

Eine der grössten Herausforderungen in der theoretischen Festkörperphysik ist die Theorie der elektronischen Eigenschaften von Materialien im Regime starker Korrelationen, welches durch das Zusammenspiel von itineranten und atomaren Verhalten gekennzeichnet ist. Diese atomähnlichen Eigenschaften ergeben sich aus komplexen multiorbitalen Wechselwirkungen, da es sich oftmals um Materialien mit halb gefüllten Schalen und (beinahe) entarteten Orbitalen handelt.

Neuerliche Bestrebungen die Modellbeschreibungen stark korrelierter elektronischer Systeme mit Dichtefunktionaltheorie zu kombinieren, eröffnen die Möglichkeit, deren elektronische Struktur von Grund auf zu bestimmen. In dieser Dissertation präsentieren wir solche ab-initio Rechnungen für Übergangsmetallstörstellen und -oxide unter der vollständigen Berücksichtigung der intra-atomaren Coulomb Wechselwirkungen.

In einem ersten Teil betrachten wir Störstellenprobleme. Wir identifizieren Multiplett-Strukturen in der Spektraldichte von Eisen-Fremdatomen auf Natrium und vergleichen diese zu Photoemissionsspektroskopien. In einer Untersuchung des multiorbitalen Kondo Effekts von Kobalt-Fremdatomen in sowohl auf Kupfer berechnen wir von Grund auf die Kondotemperatur dieser Systeme.

In einem zweiten Teil wenden wir uns Übergangsmetalloxiden zu, welche wir innerhalb der dynamischen Molekularfeld Approximation behandeln. Wir untersuchen das Phasendiagramm des Fünf-band Hubbard Modells auf dem Bethe-Gitter, welches als generisches Modell für Übergangsmetalloxide dient und identifizieren magnetische Austauschmechanismen. Für die Übergangsmetall-Monoxide Nickeloxid und Kobaltoxid vergleichen wir verschiedene Formulierungen der lokalen Wechselwirkungen und vergleichen unsere Resultate zu Photoemissionsspektroskopien.