

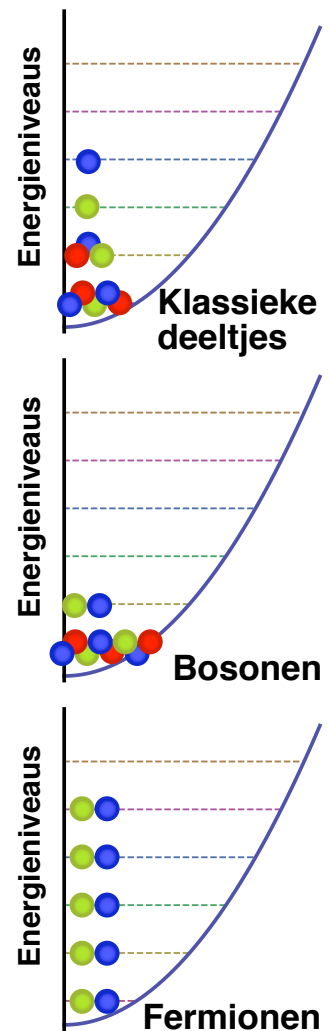
Samenvatting

Dit proefschrift gaat over **kwantummaterie**, oftewel de collectieve gedragingen van een veelheid aan kwantumdeeltjes. In een stukje metaal of legering zitten circa 10^{26} atomen die zich meestal gezamenlijk ordenen in een kristalstructuur. Natuurkundigen kijken dan ook niet naar de eigenschappen van een enkel atoom, maar naar het totale systeem: het geheel is meer dan de som der delen. Zaken als elektrische geleidbaarheid of de magnetisatie zijn vaak het gevolg van het gezamenlijk gedrag van elektronen, die relatief vrij door het kristalrooster van atomen kunnen bewegen.

Elektronen zijn kwantumdeeltjes. Nu hebben kwantumdeeltjes de bijzondere eigenschap dat ze **ononderscheidbaar** zijn, wat het beste uitgelegd kan worden met een voorbeeld. Neem twee 'kwantumdeeltjes' die kop of munt kunnen zijn met 50% kans. De kans dat deze twee kwantumdeeltjes allebei kop zijn is 33%, bij twee gewone munten is die kans 25%. De kwantumdeeltjes met deze eigenschap noemen we **bosonen**, lichtdeeltjes (fotonen) vallen in deze categorie. Uit het voorbeeld blijkt dat een verzameling bosonen relatief vaak allemaal 'hetzelfde' willen doen.

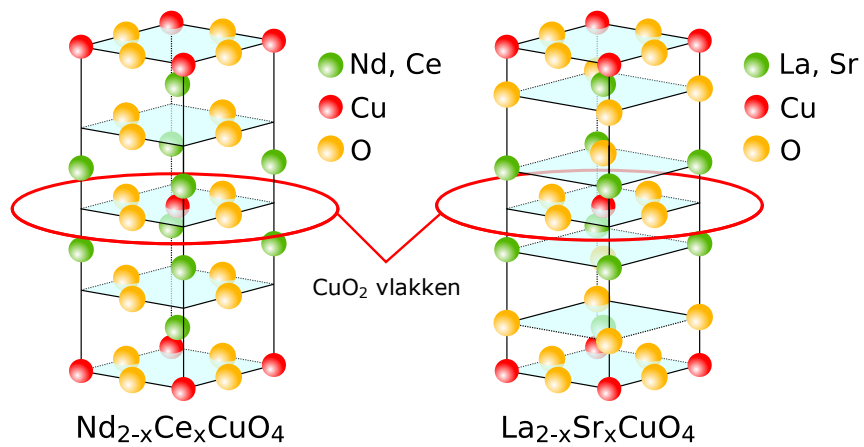
Daarentegen is er in de kwantumstatistische fysica ook een ander type kwantumdeeltje, dat zich juist extreem individualistisch gedraagt. Deze noemen we **fermionen**. Het Pauli **uitsluitingsprincipe** verbiedt dat meer dan twee fermionen in dezelfde toestand zitten. Voorbeelden van fermionen zijn elektronen, protonen en neutronen. De elektronen die in een kristalstructuur bewegen hebben dankzij het uitsluitingsprincipe elk een andere snelheid. De gemiddelde bewegingsenergie van elektronen in een metaal is daardoor veel hoger dan je zonder kwantumtheorie zou verwachten.

Het uitsluitingsprincipe lijkt op het eerste gezicht te suggereren dat fermionen onderscheidbaar zijn: elke fermion zit immers in



Figuur 1: Het verschil tussen klassieke deeltjes, de conformistische bosonen en de individualistische fermionen. De kleuren geven de spin van de deeltjes weer, zie voetnoot 42.

Figuur 2: De kristalstructuur van neodymiumceriumkuperoxide en lanthaanstrontiumkuperoxide, twee voorbeelden van cupraten. Ter indicatie is in beide materialen een koperoxidevlak omcirkeld. De natuurkundige eigenschappen komen voort uit de elektronen in deze koperoxidevlakken.



een andere toestand. Toch zijn fermionen ononderscheidbaar, omdat je namelijk niet kunt zeggen welke fermion in welke toestand zit. Neem bijvoorbeeld twee elektronen op plaats A en B . Dan kunnen we niet zeggen of elektron 1 op plaats A en elektron 2 op plaats B is ($|A_1B_2\rangle$), of andersom ($|B_1A_2\rangle$). Net zoals Schrödingers kat levend én dood tegelijk is, zijn deze twee elektronen op plaats A én B tegelijk. Dit wordt weergegeven met

$$|A_1B_2\rangle - |B_1A_2\rangle,$$

het schoolvoorbeeld van **verstrengeling**.

Fermionen hebben dus de bijzondere eigenschap dat ze met elkaar zijn verstrengeld, ook over langere afstanden. Daarbij bestaat het probleem dat men vaak niet weet waar mintekens geplaatst moeten worden om de toestand van veel verstrengelde fermionen te beschrijven. Dat wordt het '**fermion mintekenprobleem**' genoemd en vormt één van de grootste mysteries van de moderne theoretische natuurkunde. In simpele metalen zoals koper of aluminium speelt de verstrengeling geen rol omdat de elektronen beschreven kunnen worden in een **producttoestand**. Dat wil zeggen dat de verstrengeling ontward kan worden, en de toestand van het geheel beschreven kan worden als het product van de toestand van kleinere, niet verstrengelde delen.

Nu zijn er materialen die niet beschreven worden door zo'n producttoestand, en waarvoor dan ook geen goede theoretische beschrijving bestaat. De **cupraten**, een legering van koperroest met zeldzame aardmetalen zoals in afbeeldingen 2 en 3, zijn een



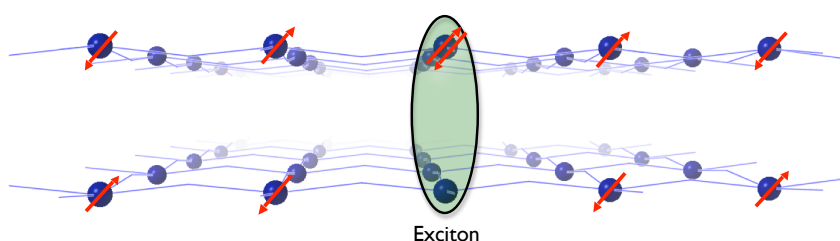
Figuur 3: Cupraten zijn bekend geworden door hun supergeleidende eigenschappen. Hier is een stuk yttrium-barium-koperoxide (YBCO) te zien, dat door middel van een magneet zwevend gehouden kan worden.

belangrijk voorbeeld. Vrijwel alle fysische eigenschappen komen voort uit de sterk wisselwerkende elektronen in de koperoxidevlakken. Deze groep materialen heeft de hoogste temperatuur waarbij supergeleiding mogelijk is, afhankelijk van de precieze verhouding tussen de zeldzame aardmetalen.

Als een cupraat ongedoteerd is, dat wil zeggen dat $x = 0$ in de chemische formule in figuur 2, is er per koperatoom één elektron vrij beschikbaar. Door de sterke afstotende kracht tussen elektronen ontstaat een file: bij elk koperatoom zit één elektron 'vast'. Deze toestand wordt de **Mott-isolator** genoemd.

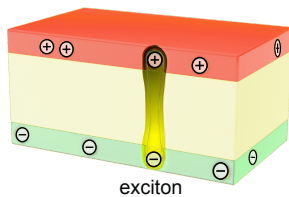
Ten opzichte van de Mott-isolator kan je elektronen toevoegen of verwijderen. Daarmee worden 'dubbelbezette' of 'lege' koperatomen gecreëerd.³⁸ Je kan het materiaal nu beschrijven in termen van de dubbelbezette en lege plaatsen, in plaats van de oorspronkelijke elektronen. Dezelfde elektrische kracht die ervoor zorgt dat elektronen elkaar afstoten, zorgt er nu voor dat dubbelbezette en lege plaatsen elkaar aantrekken. De gebonden toestand van een dubbelbezette en een lege plaats wordt een **exciton** genoemd, zie figuur 4.

³⁸ Een dubbelbezette plaats wordt een **doublon** genoemd, een lege plaats een **holon**. Het toevoegen van doublonen wordt *n*-dotering genoemd, het toevoegen van holonen heet *p*-dotering.



Figuur 4: Het zijaanzicht van een dubbellaagssysteem. De rode pijltjes stellen de spin van de elektronen voor. De dubbelbezette en lege plaats trekken elkaar aan en vormen samen een **exciton**.

De dubbelbezette en lege plaatsen gedragen zich afzonderlijk



Figuur 5: Een sandwich van verschillende materialen, waarin een dubbellaagsexciton kan ontstaan dat niet annihileert.

elk als een fermion. Doordat ze samengebonden worden door de elektrische kracht, gebeurt er iets bijzonders: **samen vormen ze een boson**. Dat betekent enerzijds dat het systeem eenvoudiger theoretisch te beschrijven is, omdat bosonen niet de ingewikkelde langedrachtsverstrengeling kennen die fermionen kenmerken. Anderzijds leidt dat tot de mogelijkheid dat alle excitonen spontaan hetzelfde gaan doen. Dit proces wordt **excitoncondensatie** genoemd. Bij lage temperaturen gedragen alle bosonen zich als één, met als gevolg dat er bosonenstromen kunnen lopen zonder weerstand. Een condensaat wordt daarom ook wel een **supervloeistof** genoemd.

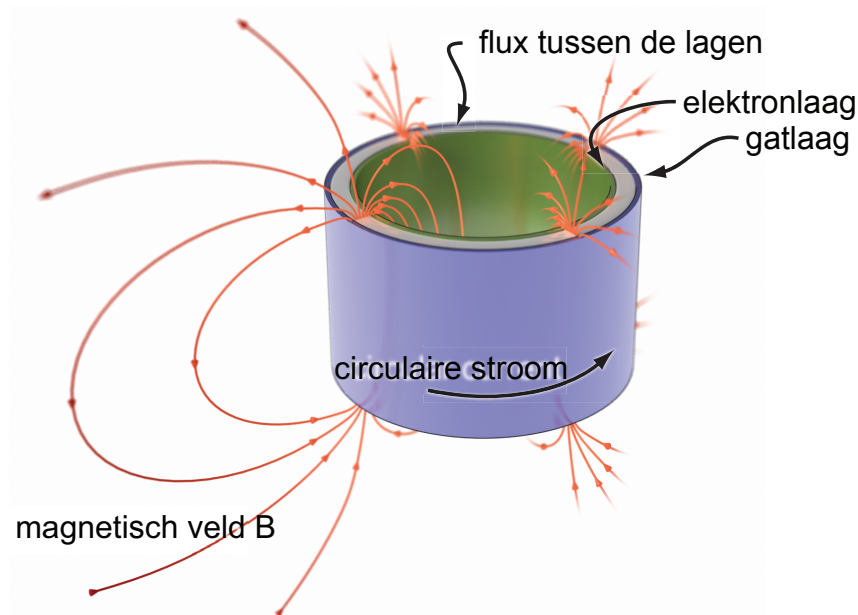
Het belangrijkste obstakel voor het vormen van excitoncondensaten is dat excitonen kunnen annihileren. Daarbij verplaatst het 'extra' elektron van de dubbelbezette plaats naar de lege plaats, met als gevolg dat het exciton verdwenen is. Om dit te voorkomen kun je het materiaal met de dubbelbezette plaatsen fysiek scheiden van het materiaal met de lege plaatsen. Dit kan gedaan worden door een **dubbellaagssysteem** te maken, een soort sandwich van het dubbelbezette en lege materiaal zoals in figuur 5.

In de groep van Hans Hilgenkamp aan de Universiteit Twente wordt geprobeerd om zulke sandwiches te maken van cupraten. Mijn theoretische onderzoeksvragen zijn daarbij: *is het mogelijk om excitoncondensaten te maken in de cupraten? Zo ja, wat voor eigenschappen heeft zo'n excitoncondensaat?*

Fenomenologie van excitoncondensaten

In hoofdstuk 2 beschrijf ik wat dubbellaags-excitoncondensaten zijn, en in het bijzonder de gallium-arsenide sandwiches waarin het al gelukt is om condensatie te bereiken. Dankzij universele eigenschappen van de natuurwetten is het mogelijk om onafhankelijk van de details van een systeem al vrij veel effecten te voorspellen. Om die voorspellingen te kunnen doen leid ik de vrije energie van een excitoncondensaat af, deze manier van werken wordt **fenomenologie** genoemd.

Als je een excitoncondensaat hebt, kun je afleiden dat een **excitonstroom** zonder weerstand moet kunnen bestaan. In het geval van een circulaire stroom spelen kwantummechanische effecten op. Immers: alle excitonen gedragen zich als één, en de stroom



Figuur 6: Het magnetisch veld tussen de twee lagen van het dubbellaags-excitoncondensaat is gekwantiseerd.

van alle excitonen wordt bepaald door de fase van een complexe golffunctie. Een complexe fase is periodiek,³⁹ en dientengevolge kan een circulaire stroom alleen maar in bepaalde hoeveelheden voorkomen. Daaruit volgt weer dat het magnetisch veld tussen de p en n -laag **gekwantiseerd**⁴⁰ moet zijn.

Fermionische modellen

Vervolgens introduceer ik in hoofdstuk 3 de specifieke theorie die van toepassing is op de cupraten. Binnen het **Hubbard-model** kunnen de elektronen vrijelijk van het ene koperatoom naar het andere springen. Daarnaast kost het energie om twee elektronen op één plaats samen te brengen. Hoe simpel dit model ook klinkt, natuurkundigen zijn er nog steeds niet in geslaagd dit model volledig te begrijpen.

Een manier om dit model op te lossen is met **gemiddelde-veldentheorie**. Daarmee probeer je een producttoestand te formuleren, waarbij de verstrengeling van de fermionen ontward wordt. Dit is echter een onbetrouwbare benadering, omdat je daarbij impliciet aangenomen hebt dat de elektron-elektron interacties zwak zijn terwijl die in de cupraten juist sterk zijn.

Een andere manier is om te proberen met supercomputers

³⁹ Net zoals de wijzers op een klok: 13 uur is hetzelfde als 1 uur, bijvoorbeeld.

⁴⁰ Het kan alleen bepaalde waarden aannemen. Bijvoorbeeld: als je telt ga je van 1 naar 2, daar kan niets tussen in zitten zolang je jezelf beperkt tot gehele getallen.

⁴¹ De naam is inderdaad afkomstig van het Monte Carlo casino. Men kan namelijk het resultaat van veel willekeurig gespeelde spellen precies voorspellen, zolang het inderdaad heel veel spellen zijn.

kleine systemen exact op te lossen. De methode die we hiervoor gebruiken heet **Determinant Quantum Monte Carlo**, waarbij we de eigenschappen van een groot aantal willekeurig geconstrueerde toestanden uitrekenen.⁴¹ Een grote beperking is echter dat het fermion mintekenprobleem tot grote onzekerheden in de resultaten leidt. We kunnen daarom niet met zekerheid zeggen of er excitoncondensatie optreedt in het dubbellaags Hubbard-model.

Effectieve bosonische modellen

⁴² Spin is de interne rotatie van een elektron. Dat is een kwantummechanisch fenomeen dat wordt weergegeven door middel van een pijltje met een willekeurige richting.

Het grootste nadeel van de fermionische modellen is dan ook het fermion mintekenprobleem. Daarentegen, als de interacties sterk zijn kun je de cupraatsandwich beschrijven met **alleen bosonen**. Naast de excitonen heb je daarbij ook de spin⁴² van het elektron. In hoofdstuk 4 leiden we het **exciton-spin $t - J$ model** af gebaseerd op het Hubbard-model.

In de Mott-isolator op de vierkante roosterstructuur van de koperatomen ordenen de elektronspins zich als een antiferromagneet. Dat betekent dat op de helft van de koperatomen de spin omhoog wijst, en op de andere helft omlaag, zodanig dat een omhoog-spin altijd omgeven is door spins die omlaag wijzen. Een exciton kan zich in zo'n achtergrond niet goed bewegen. Zolang de antiferromagnetische orde bestaat, is een exciton **gefrustreerd** en de gevolgen daarvan moet je kunnen zien in het lichtabsorptiespectrum van cupraten.

In hoofdstuk 5 bespreken we dan uiteindelijk het excitoncondensaat in een cupraatsandwich. Excitoncondensatie blijkt mogelijk te zijn zolang de bewegingsenergie van de excitonen groot genoeg is. In plaats van frustratie te veroorzaken helpen de spins en excitonen elkaar nu. In het condensaat **lenen de spins bewegingsenergie** van de excitonen, met als gevolg dat je de condensaatdichtheid kan meten via de bewegingsenergie van de spins.

Als de bewegingsenergie van de excitonen niet groot genoeg is om een condensaat te vormen, ontstaat er **fasescheiding** tussen de antiferromagneet, het condensaat en een exciton vaste stof.

In een **exciton vaste stof** zitten de excitonen vast op een specifieke plaats en kunnen niet bewegen, net zoals atomen vastzitten in een blok metaal. Zo'n vaste toestand ontstaat als de afstotende krachten tussen de excitonen groter zijn dan de bewegingsenergie.

De simpelste manier om de krachten te beschrijven is om alleen de afstoting tussen twee naastgelegen excitonen te beschouwen. In hoofdstuk 5 laten we zien dat dit leidt tot een **schaakbord**-patroon van excitonen. Maar in werkelijkheid is de afstoting tussen excitonen voelbaar over langere afstanden. Deze lange-afstandsinteractie zorgt ervoor dat een hele verzameling verschillende exciton vaste stoffen kunnen ontstaan. Dit beschrijven we in hoofdstuk 6, waar we voor het gemak de bewegingsenergie van de excitonen verwaarlozen.

Conclusie en vooruitblik

Het is theoretisch dus mogelijk om een excitoncondensaat te maken in cupraatsandwiches. Ik heb daarbij enkele experimentele voorstellen gedaan om dit condensaat te kunnen onderzoeken. Het probleem is echter dat de **theorie ver voor de experimenten uit loopt**. De grootste uitdaging voor dit vakgebied is dan ook de experimentele realisatie van de cupraatsandwiches.

De verschillende fenomenologische, fermionische en bosonische modellen die in dit proefschrift gebruikt zijn dienen als inspiratie om nog eens na te denken over langeafstandsverstrengeling. In hoofdstuk 7 bespreek ik dan ook enkele ideeën over kwantummatie die leiden tot stellingen behorend bij dit proefschrift.