Downloaded from UvA-DARE, the institutional repository of the University of Amsterdam (UvA)
http://dare.uva.nl/document/165871

File ID	165871
Filename	Samenvatting

SOURCE (OR PART OF THE FOLLOWING SOURCE):

Type	Dissertation
Title	Emergent electronic matter : Fermi surfaces, quasiparticles and magnetism in manganites and pnictides
Author	S. de Jong
Faculty	Faculty of Science
Year	2010
Pages	156
ISBN	978-90-9025255-1

FULL BIBLIOGRAPHIC DETAILS:
http://dare.uva.nl/record/332687

Copyright

It is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), other then for strictly personal, individual use.

UvA-DARE is a service provided by the library of the University of Amsterdam (http://dare.uva.nl)

Nederlandse samenvatting

Enkele van de heden ten dage meest bestudeerde fysische verschijnselen vinden hun oorsprong in de gezamenlijke interactie tussen de vele deeltjes (en dan met name de elektronen) waaruit het systeem is opgebouwd. Als een fysisch fenomeen niet een eigenschap is van de aparte deeltjes in een systeem, maar alleen van een verzameling van de deeltjes, dan wordt deze eigenschap emergent genoemd.

Hoewel dit misschien exotisch klinkt, zijn wij zelf een voorbeeld van een (biologisch) emergent systeem: het leven. Alleen de hele verzameling van water, eiwitten, vetten, DNA, suikers, zuren, ionen, etc. die een cel omvat maken het tot een levend systeem. Afzonderlijk is elk van deze bouwstenen slecht een levenloos object.

Twee van de meest bestudeerde fysische emergente systemen zijn materialen die hoge temperatuur en onconventionele supergeleiding (HTSC) en kolossale magneetweerstand (CMR) vertonen. Supergeleiding is het verlies van elektrische weerstand en treedt slechts voor bepaalde materialen op beneden een specifieke kritische temperatuur.

Supergeleiding is overigens een Nederlandse ontdekking: in 1911 nam Heike Kamerlingh Onnes in Leiden waar dat de weerstand van kwik beneden 4 K oneindig klein werd. Sindsdien is gebleken dat vele metalen, waaronder titanium, zink, aluminium, tin, wolfraam en lood (en verschillende legeringen) supergeleiders zijn, de meeste met een transitietemperatuur ver beneden de 10 K.

In 1986 werd er echter een grote groep stoffen ontdekt, die in sommige gevallen supergeleiding vertonen bij temperaturen boven de 100 K (!), terwijl de overgangstemperatuur (T_c) voor conventionele supergeleiders bijna nooit boven de 30 K ligt. Deze groep stoffen zijn opgebouwd uit lagen van koperoxide afgewisseld met andere tussenlagen en worden als geheel de cupraten genoemd. Deze ontdekking is bijzonder, ten eerste omdat koper zelf geen supergeleider is en ten tweede omdat deze materialen een gecompliceerde, gelaagde kristalstructuur hebben, in tegenstelling tot de doorgaans simpele metalen die tot de conventionele supergeleiders behoren.

In 2008 is een tweede groep hoge temperatuur supergeleiders ontdekt, ditmaal bestaande uit ijzer verbindingen. Wederom is ijzer zelf geen supergeleider. Sterker nog: ijzer is een ferromagneet en ferromagnetisme en supergeleiding sluiten elkaar meestal wederzijds uit. De materialen die in 2008 ontdekt zijn heten ijzer pnictides en stellen, samen met de bovengenoemde cupraten, de moderne wetenschap voor een aantal grote en belangrijke vragen: wat is het mechanisme achter deze hoge temperatuur supergeleiding en kunnen wij, als we dit mechanisme begrijpen, supergeleiders met een overgangstemperatuur in de buurt van kamertemperatuur ontwikkelen? Kamertemperatuur supergeleiding zou een technologische revolutie betekenen die zijn weerga niet kent.

Ook het CMR effect heeft zijn wortels in een grote verandering van de elektrische weerstand als een functie van temperatuur. Deze weerstandsverandering valt samen met een overgang van een paramagnetische naar een ferromagnetische toestand. Het

CMR effect behelst dat de overgangstemperatuur sterk beïnvloed kan worden door het aanleggen van een extern magnetisch veld: in sommige materialen kan een veld van een paar Tesla de transitie temperatuur ongeveer 100 K omhoog stuwen.

Het CMR effect is de overtreffende trap (in termen van weerstandsverandering) van het gigantische magneetweerstandseffect (GMR). GMR is het fysische verschijnsel wat ten grondslag ligt aan het mechanisme om harddisks uit te lezen en wordt als zodanig op grote schaal toegepast in ons dagelijks leven. De ontdekkers van het GMR effect hebben hiervoor overigens in 2007 de Nobelprijs ontvangen.

Het CMR effect wordt voornamelijk bestudeerd in een specifieke groep materialen, de manganieten. Dit zijn stoffen die allemaal gebaseerd zijn op mangaan dat in de kristalstructuur octaedrisch wordt omringd door zes zuurstof atomen.

Zoals gezegd vinden zowel HTSC als het CMR effect hun oorsprong in het collectieve gedrag van de vele elektronen, hun onderlinge interacties alsmede de interacties met het kristalrooster van de vaste stoffen die deze fenomenen tentoonspreiden. Het feit dat HTSC en CMR geworteld zijn in de intrinsieke veel-deeltjes eigenschappen van het systeem, maakt ze fundamenteel moeilijk om te begrijpen. Het mag dan ook geen verbazing wekken dat, ondanks een enorme verzameling experimenteel en theoretisch werk, het mechanisme achter deze twee fenomenen tot op de dag van vandaag niet volledig begrepen is.

Dit proefschrift is opgebouwd uit twee (min of meer) onafhankelijke delen, die de twee bovengenoemde fysische fenomenen behandelen. De twee delen worden hieronder in aparte secties samengevat. Het CMR effect wordt aangehaald in verband met de verbinding $La_{(2-2x)}Sr_{(1+2x)}Mn_2O_7$, dubbellaags LSMO (of kortweg LSMO), een systeem dat al gedurende vele jaren in het middelpunt van de aandacht staat van de fysische gemeenschap die gecondenseerde materie bestudeert. Hoge temperatuur supergeleiding wordt niet direct behandeld, echter, er wordt wel een studie gepresenteerd naar de fundamentele elektronische eigenschappen die ten grondslag liggen aan de supergeleiding van de ijzer pnictides. De behandelde materialen in deze context zijn $BaFe_2As_2$ en $EuFe_2As_2$, zogenaamde moederverbindingen die supergeleidend gemaakt kunnen worden door kation substitutie (of drukverhoging). Een algemene aanname is dat hun fysische eigenschappen sterk verbonden zijn met de hoge temperatuur supergeleiding zelf.

Omdat deze fenomenen, HTSC en CMR, beide hun oorsprong vinden in de elektronische structuur, inclusief de veel-deeltjes interacties, van het betreffende materiaal, vergt hun bestudering een experimentele techniek die idealiter deze structuur direct kan meten. Zo een techniek is hoekopgeloste foto-emissie spectroscopie (ARPES).

Hoekopgeloste foto-emissie is een foton-in, electron-uit techniek. Door monochromatisch licht op een te onderzoeken materiaal te schijnen, worden elektronen vanuit de vaste stof in het vacuüm geëmitteerd. De snelheid en emissiehoek van de geëmitteerde elektronen zijn te meten. Deze twee grootheden zijn direct te linken aan de bindingsenergie en het kristalmoment van de elektronen in de vaste stof. Aangezien deze laatste twee grootheden de toestand van het elektron in het materiaal bijna volledig definiëren, is ARPES in staat is om alle mogelijke informatie te verschaffen over de elektronische structuur van het te onderzoeken systeem. [5]

[5] Een derde relevante grootheid voor electronen is hun spin. Het is ook mogelijk om een spinopgelost

ARPES is dus in staat de bandenstructuur van een één-kristal direct af te beelden. Ook de elektron-elektron en elektron-fonon interacties en de mogelijke interacties tussen de elektronen en de collectieve excitaties van het spinsysteem kunnen ontsluierd worden met behulp van een foto-emissie experiment. Dit maakt ARPES dé techniek om informatie in te winnen over fysische processen die gebaseerd zijn op elektroninteracties. Logischerwijs is ARPES de techniek van keuze voor het experimentele werk dat in dit proefschrift behandeld wordt.

Manganieten en kolossale magneetweerstand

Het eerste deel van deze dissertatie is gewijd aan $La_{(2-2x)}Sr_{(1+2x)}Mn_2O_7$: een dubbellaags manganiet die CMR laat zien in een smal gebied van het (magnetische) fasediagram (temperatuur tegen Sr dotering), waar tevens metallisch gedrag waargenomen wordt bij lage temperaturen. Dit gebied komt overeen met een Sr dotering $0.30 < x < 0.50$.

In de inleiding van de dissertatie worden de kristalstructuur en de relevante fysica van LSMO behandeld. Elektronentransport in dit materiaal (en de CMR manganieten in het algemeen) bij hoge temperaturen vindt, naar men aanneemt, plaats middels het hoppen van polaronen. Dit is te wijten aan het grote kristalveld en de daarmee samenhangende Jahn-Teller deformatie van het kristalrooster, in samenspel met een grote waarde voor de Hund's regel koppeling. Deze interacties leiden, via super exchange, tot een antiferromagnetische spin ordening, orbitaal ordening en tot een isolerend gedrag qua elektronentransport.

In geval van dotering krijgt LSMO een gemengd valentiekarakter en kunnen de bovenstaande mechanismen in competitie geraken met een ferromagnetische dubbel exchange interactie, hetgeen leidt tot ladingsdragers in de vorm van fluctuerende, gecorreleerde polaronen. Dezen bezitten een zeer sterk toegenomen effectieve massa in vergelijking met het vrije elektron. Hoewel dit gedrag vrij goed te beschrijven lijkt in de isolerende, paramagnetische toestand bij hoge temperaturen, is het nog steeds niet bekend hoe de isolator-naar-metaal overgang in LSMO en aanverwante stoffen bewerkstelligd wordt als de temperatuur beneden de Curie temperatuur van het betreffende materiaal wordt gebracht. Tevens is de connectie met het CMR effect nog onbekend.

Deze onzekerheden gelden met name voor de elektronische structuur bij lage temperatuur. Er is heden ten dage veel discussie over de spectrale signatuur van een polaronische geleider (zoals dus LSMO) in een hoekopgelost foto-emissie experiment. ARPES metingen in het verleden op LSMO hebben een grote spreiding laten zien: van een materiaal met een pseudo-kloof, zonder spectraal gewicht aan het Fermi niveau tot een materiaal met een scherp gepiekt spectraal gewicht aan het Fermi niveau, ook wel quasi deeltjes (of QP-pieken) genoemd, op specifieke punten in k-ruimte. In Hoofdstuk 3 tonen we aan dat deze scherpe QP-pieken zelfs waargenomen kunnen worden bij alle k locaties op het Fermi oppervlak van dubbellaags LSMO. Echter, de temperatuur afhankelijkheid en de ontwikkeling als functie van Sr dotering van deze QP-pieken is hoogst ongebruikelijk en komt niet overeen met de fysische eigenschappen van de bulk van de betreffende LSMO één-kristallen

In Hoofdstuk 4 presenteren we een gedetailleerde hoekgeïntegreerde foto-emissie

ARPES experiment uit te voeren.

studie, gebruikmakend van harde Röntgen straling. Met deze metingen kunnen we aantonen dat fasescheiding niet voorkomt in LSMO bij temperaturen ver boven of onder de overgangstemperatuur en dat de ongebruikelijke eigenschappen van de QP-pieken dus niet met een dergelijk scenario verklaard kunnen worden. Deze studie laat tevens zien dat het oppervlakte en de bulk van LSMO in hoge mate overeenkomen in termen van dotering.

Additionele, gedetailleerde hoekopgeloste PES metingen laten zien dat het QP-gepiekte spectrale gewicht dicht bij het Fermi niveau eigenlijk afkomstig is van een fractie van het gehele breukoppervlak van het één-kristal. Dit feit, in combinatie met het ongewone gedrag van de QP-pieken, leidt tot de conclusie dat het QP-gepiekte, kloofloze, metallische Fermi oppervlak niet representatief is voor dubbellaags LSMO. In plaats daarvan is het afkomstig van inherente stapelfouten in de pseudo-perovskiete kristalstructuur van dubbellaags LSMO, die tot kleine inclusies leiden met een groter aantal opeenvolgende MnO_2 vlakken. Dientengevolge hebben deze inclusies dus fysische eigenschappen die meer lijken op de driedimensionale perovskiet manganieten.

Belangrijker is dat we daaruit kunnen afleiden dat de ware spectrale signatuur van dubbellaags LSMO die van een pseudo-gekloofd 'slecht metaal' is, dat nergens in k-ruimte scherp gepiekt spectraal gewicht aan het Fermi-niveau heeft. Deze observaties zijn in overeenstemming met optische spectroscopie studies en meer algemene beschouwingen vanuit het oogpunt van bulk transportmetingen. Bovendien geeft de interpretatie van het gepiekte spectraal gewicht aan E_F een verklaring voor de inconsistenties tussen de meerderheid van de verschenen APRES studies op dit materiaal.

IJzer Pnictides

Het tweede deel van dit proefschrift heeft de elektronische structuur van de moederverbindingen van de recent ontdekte ijzer pnictide supergeleiders als onderwerp. De ontdekking van supergeleiding in de pnictides (de stoffen zelf waren overigens al jaren bekend) in 2008 heeft geleid tot een enorme onderzoeksinspanning naar de synthese en de fysische eigenschappen van deze stoffen, zowel experimenteel als theoretisch. Omdat de pnictides een jong onderzoeksveld zijn, zijn veel van de fundamentele vraagstukken nog onbeantwoord. Het is bijvoorbeeld nog niet bekend hoe gecorreleerd het elektronensysteem van de pnictides is (hoewel het metallische karakter van de moederverbindingen laat zien dat de pnictides in ieder geval minder gecorreleerd zijn dan de andere grote familie van hoge temperatuur supergeleiders, de cupraten).

Ook de oorsprong van de antiferromagnetische ordening van de moeder- en laag gedoteerde verbindingen wordt nog niet begrepen. Dit geldt ook voor hun bandenstructuur. Men zou zelfs kunnen beweren dat er nog steeds over de details van het generieke fase diagram van de pnictide familie gedebatteerd wordt: zaken als eerste versus tweede orde fase overgangen en de coëxistentie van supergeleiding en antiferromagnetisme verschillen sterk tussen de vele verschenen studies.

In Hoofdstuk 5 presenteren we hoekgeïntegreerde PES en Röntgen foto-emissie metingen aan $BaFe_2Fe_2$, om enkele van de meer fundamentele aspecten van deze verbinding op te helderen. We laten zien dat de elektronische structuur van de bulk en het oppervlakte verschillend zijn, wegens het ontbreken van een natuurlijk breukvlak in de kristalstructuur. Echter, het effect van de resulterende, afwijkende elektronische struc-

tuur aan het oppervlakte is alleen relevant voor de bovenste As en (halfgesloten) Ba lagen en heeft weinig tot geen effect op de Fe 3d toestanden dicht bij het Fermi niveau, zoals die waargenomen worden in een foto-emissie experiment. We laten ook zien dat de hybridisatie tussen de Fe 3d en As 4p toestanden minimaal is dicht bij het Fermi niveau.

In Hoofdstuk 6 verleggen we onze focus naar een andere moederverbinding, namelijk $EuFe_2As_2$. We onderzoeken de bij lage temperatuur orthorhombisch en antiferromagnetisch (AFM) geordende fase van dit materiaal, dat zichzelf onderscheid van de overige $M122$ (M = Sr, Ba, Ca,...) verbindingen doordat, behalve de ijzermomenten, ook de spinmomenten op Eu ordenen en wel op AFM wijze en bij 20 K. Door gebruik te maken van variabel polariseerbaar licht en verschillende fotonenergieën, laten we, met niet eerder vertoonde helderheid, zien dat de grote Fermi oppervlakken in de tetragonale hoge temperatuur fase van dit materiaal opbreken in kleine druppelvormige Fermi oppervlakten in de lage temperatuur fase. Hierbij wordt de vrije ladingsdragersdichtheid decimeerd tot een fractie van de oorspronkelijke waarde. Onze observaties zijn in overeenstemming met bevindingen uit optische conductiviteits- en quantumoscillatiestudies.