

Cooperparen van een elektron en een gat

Cooperparen kennen we als paren van elektronen in een supergeleider. In dit artikel beschrijven we onze waarneming van Cooperparen van een elektron en een gat. Deze elektron-gat-Cooperparen komen niet voor in supergeleiders, maar wel in halfgeleiders. Onder sterke excitatie van de halfgeleider zinkoxide is bij lage temperatuur een nieuwe bijdrage zichtbaar in het lichtemissiespectrum, die het resultaat is van gestimuleerde emissie van ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen.

Marijn Versteegh, Arjon van Lange, Henk Stoof en Jaap Dijkhuis

24

In 1911 ontdekte Kamerlingh Onnes dat beneden 4 kelvin de elektrische weerstand van kwik nagenoeg volledig verdwijnt [1]. De oorzaak van deze verbazingwekkende supergeleiding bleef lange tijd een raadsel. Pas in 1957 werd een succesvolle verklaring gevonden door Bardeen, Cooper en Schrieffer [2]. Volgens hun theorie, de zogenaamde BCS-theorie, is supergeleiding het gevolg van Bose-Einsteincondensatie van paren van elektronen, Cooperparen genaamd. In 1964 pasten Keldysh en Kopaev de BCS-theorie toe op een halfgeleider [3]. Zo kwamen ze tot de voorspelling dat ook in een halfgeleider onder bepaalde omstandigheden Cooperparen een Bose-Einsteincondensaat

kunnen vormen. In dit geval geen elektron-elektron-Cooperparen, maar elektron-gat-Cooperparen. Hun suggestie werd later verder theoretisch uitgewerkt door Comte en Nozières [4]. Deze elektron-gat-Cooperparen zouden voor moeten komen in halfgeleiders met een directe bandkloof onder sterke excitatie bij lage temperatuur. Experimenteel bewijs voor deze theorie bleef echter uit. Recentelijk hebben wij echter ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen waargenomen in een sterk aangeslagen kristal van zinkoxide (ZnO) [5]. Deze elektron-gat-Cooperparen zijn neutraal en geven daarom geen bijdrage aan de geleiding, maar ze leiden wel tot sterke lichtemissie.

hebben immers gelijke lading en stoten elkaar juist af. De zeer zwakke aantrekking is het indirecte resultaat van wisselwerking van de elektronen met de positieve ionen van het kristalrooster.

In een gas van elektronen en gaten in een halfgeleider is de aantrekking veel gemakkelijker te begrijpen. Bij het aanslaan worden elektronen naar de geleidingsband gebracht en blijven gaten achter in de valentieband. Er is Coulombaantrekking tussen de negatief geladen elektronen en de positief geladen gaten. Bij lage dichtheid leidt deze aantrekking niet tot Cooperparen, maar tot gebonden elektron-gattoestanden die excitonen worden genoemd. Excitonen lijken op water-

Marijn Versteegh (1982) studeerde natuurkunde aan de Universiteit Utrecht. In 2011 promoveerde hij aan dezelfde universiteit op een onderzoek naar de quantumfysica van elektronen en gaten in ZnO. Nu werkt hij als postdoc aan de TU Delft bij het Kavli Institute of Nanoscience.



M.A.M.Versteegh@tudelft.nl

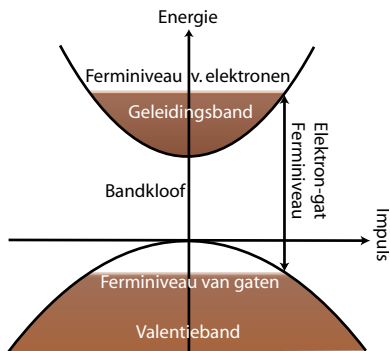
Aantrekkingskracht

Voor het bestaan van Cooperparen in een gas van fermionen zijn volgens de BCS-theorie twee elementen noodzakelijk. Ten eerste moet er een aantrekkingskracht zijn tussen de deeltjes. Deze aantrekking moet echter zo zwak zijn dat zij op zichzelf niet al tot paarvorming leidt. In een elektronengas in een supergeleider is het op het eerste gezicht vreemd dat zo'n kracht er is; twee elektronen

Arjon van Lange (1985) studeerde natuurkunde aan de Universiteit Utrecht. In 2011 studeerde hij af met een masteronderzoek naar BCS-



theorie en luminescentie bij lage temperatuur in ZnO. Momenteel doet hij als promovendus aan dezelfde universiteit onderzoek naar de wisselwerking tussen koude atomen en nanofotonische structuren.

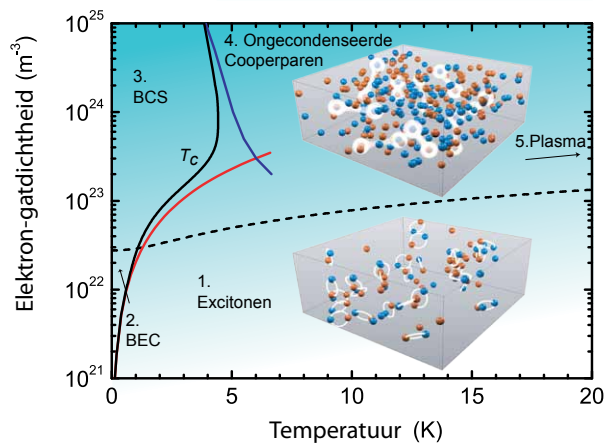


Figuur 1 Schematische weergave van de bandenstructuur en het gas van elektronen en gaten bij hoge dichtheid (sterke excitatie) en lage temperatuur. Het gas van elektronen en gaten is hier in quasi-evenwicht: Er is wel een thermisch evenwicht, maar geen chemisch evenwicht, omdat de dichtheid van elektronen en gaten in de loop van de tijd afneemt.

stofatomen, met het verschil dat een gat de plaats inneemt van het proton. Echter, wanneer de dichtheid van elektronen en gaten zeer hoog is, zoals in een sterk aangeslagen halfgeleiderkristal, dan wordt de Coulombwisselwerking sterk verzwakt door afscherming van de lading. Elektronen worden effectief omringd door gaten, zodat vanaf een bepaalde afstand, de zogenaamde afschermingslengte, de lading van het elektron nauwelijks meer voelbaar is. En omgekeerd worden gaten omringd door elektronen, zodat ook hun lading wordt afgeschermd. Als de dichtheid van elektronen en gaten groter is dan de zogenaamde Mottdichtheid, is de afschermingslengte kleiner dan de Bohrstraal van de excitonen en kunnen excitonen niet meer bestaan. In die situatie is er nog wel aantrekking, maar die is te zwak om op zichzelf tot stabiele paren te leiden.

Pauliblokkade

Omdat de aantrekking op zichzelf te zwak is, is voor de vorming van Cooperparen een tweede element noodzakelijk: de Pauliblokkade. De Pauliblokkade is een veeldeeltjeseffect dat optreedt in fermionische gassen bij hoge dichtheid en lage temperatuur. Onder die omstandigheden zijn nagenoeg alle toestanden bezet tot aan een zeker energieniveau, het Fermi-niveau. Dat is het resultaat van het uitsluitingsprincipe van Pauli: identieke fermionen kunnen enkel toestanden bezetten die niet al door een ander



Figuur 2 Fasediagram van het gas van elektronen en gaten in ZnO. Er zijn vijf gebieden: 1. Excitonengas. 2. Bose-Einsteincondensaat van excitonen. 3. BCS-condensaat van elektron-gat-Cooperparen. 4. Ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen. 5. Plasma van ongebonden elektronen en gaten. De blauwe curve is de berekende kritische temperatuur voor condensatie in het BCS-regime. De rode grafiek is de berekende kritische temperatuur voor condensatie in het BEC-regime. De stippe lijn geeft de Mottdichtheid aan. De inzetten zijn visualisaties van het gas van elektronen en gaten in de gebieden 1 en 4.

fermion zijn bezet.

In een sterk aangeslagen halfgeleider zijn er twee Fermi-niveaus: een Fermi-niveau van elektronen in de geleidingsband en een Fermi-niveau van gaten in de valentieband (figuur 1). Het energieverval tussen deze twee niveaus noemen wij het elektron-gat-Fermi-niveau. Vanwege de Coulombaan-trekking moet een elektron-gatpaar een energie hebben die iets kleiner is dan dit elektron-gat-Fermi-niveau. Zo'n paar kan niet gemakkelijk door botsingen gescheiden worden, omdat er voor de losse elektronen en gaten die uit zo'n scheiding zouden ontstaan bijna geen lege toestanden zijn waar ze naartoe kunnen. Zo leidt de bezetting van vrijwel alle

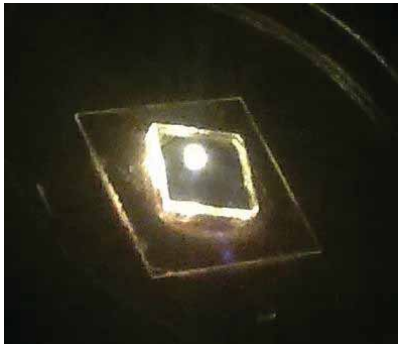
toestanden tot aan de Fermi-niveaus tot stabiele paren, Cooperparen. Deze elektron-gat-Cooperparen hebben hun paarenergie niet binnen de bandkloof, zoals excitonen, maar nabij het elektron-gat-Fermi-niveau.

Fasediagram

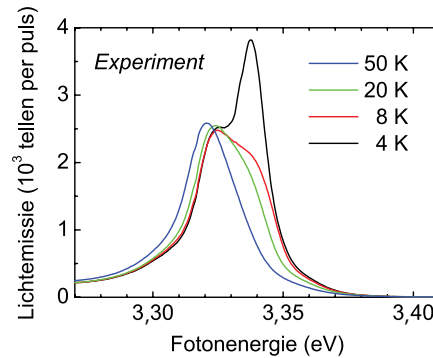
Om te weten te komen bij welke dichtheden en temperaturen elektron-gat-Cooperparen voorkomen in ZnO, hebben wij met behulp van quantumveel-deeltjestheorie het fasediagram berekend van het gas van elektronen en gaten in ZnO [5]. In figuur 2 zijn vijf gebieden weergegeven. Bij lage dichtheid is er een excitonengas (gebied 1). Bij zeer lage temperaturen, beneden de kritische tempera-

Een analogie

Elektronen en gaten in een halfgeleider zijn soms net mensen. Onder normale omstandigheden vormen ze redelijk stabiele paren: excitonen. Wanneer ze echter voortdurend in aanraking komen met aantrekkelijke leden van het andere geslacht, kunnen ze ontrouw worden. Zo is het ook met elektronen en gaten: als die te dicht op elkaar zitten, blijven er geen stabiele paren over. Hierop bestaat echter een interessante uitzondering. Terug naar de vergelijking met mensen: veronderstel dat er in een stad zowel goed verwarmde als slecht verwarmde huizen zijn. Zo lang het warm blijft, maakt het weinig uit waar men woont. Als het echter koud wordt, gaan alle mannen en vrouwen in de best verwarmde huizen wonen. Voor een stel in een goed verwarmd huis is de drempel om te scheiden vervolgens hoog: alle andere goed verwarmde huizen zijn bezet en niemand wil naar een koud tochtig huis verhuizen. Paren blijven daarom toch bij elkaar. Hetzelfde geldt voor elektron-gat-Cooperparen: paren van elektronen en gaten die bij hoge dichtheid en lage temperatuur bij elkaar blijven, omdat alle andere gunstige plekken (alle andere toestanden met energie onder het Fermi-niveau) al bezet zijn.



Figuur 3 Het zinkoxidekristal waarin we elektron-gat-Cooperparen hebben gevonden.



Figuur 4 Gemeten lichtemissiespectra van het sterk aangeslagen ZnO-kristal (elektron-gatdichtheid is $9 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$). Bij 50 K is er alleen emissie van een plasma van elektronen en gaten. Wanneer de temperatuur wordt verlaagd, duikt een nieuwe emissiepiek op: emissie van ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen.

tuur, vormen de excitonen een Bose-Einsteincondensaat (gebied 2). Bij dichtheden boven de Mottdichtheid kunnen excitonen niet meer bestaan en is er een condensaat van elektron-gat-Cooperparen (gebied 3). Dit is een superfluïde toestand, vergelijkbaar met de supergeleidende toestand van een supergeleider. De overgang van gebied 2 naar gebied 3 is de beroemde BEC-BCS-oversteek (*crossover*), die recentelijk in atomaire gassen op spectaculaire wijze is waargenomen [6]. Boven de kritische temperatuur zijn er ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen (gebied 4) en bij nog hogere temperatuur dissociëren deze zodat er een plasma van elektronen en gaten overblijft (gebied 5).

Een interessante conclusie die uit het berekende fase-diagram kan worden getrokken, is dat het gebied van de ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen experimenteel bereikbaar is.

Het bestaan van deze paren hebben wij nu voor het eerst experimenteel aangetoond.

Experiment

Het elektron en het gat van een elektron-gat-Cooperpaar kunnen recombineren onder uitzending van een foton. Elektron-gat-Cooperparen zijn daarom te detecteren door de lichtemissie van een sterk aangeslagen ZnO-kristal bij lage temperaturen te meten. Daarom hebben wij een ZnO-éénkristal afgekoeld in een cryostaat en het aangeslagen met laserpulsen van zeer hoge intensiteit met een fotonenergie van 1,55 eV en een duur van 160 femtoseconden (figuur 3). Het lichtemissiespectrum hebben we gemeten.

De belangrijkste truc van ons experiment is dat de excitatiefotonen een zodanige energie hebben dat er drie fotonen geabsorbeerd moeten worden om één elektron-gatpaar te maken. De minimale energie om één elektron-gatpaar te creëren in ZnO is 3,4 eV. Fotonen met een energie van 1,55 eV kunnen veel dieper het kristal binnendringen dan fotonen met een energie groter dan 3,4 eV, die door sterke absorptie niet verder komen dan een diepte van 50 nm. Het gevolg is dat in ons experiment elektron-gat-Cooperparen kunnen worden gecreëerd over de hele dikte van het kristal (500 μm) en dat daarvoor ook over deze hele dikte spontane emissie van elektron-

gat-Cooperparen kan worden versterkt door gestimuleerde emissie van elektron-gat-Cooperparen. Deze versterkte spontane emissie maakt het eenvoudiger de lichtemissie van de elektron-gat-Cooperparen te onderscheiden van licht van andere bronnen.

Gemeten spectra

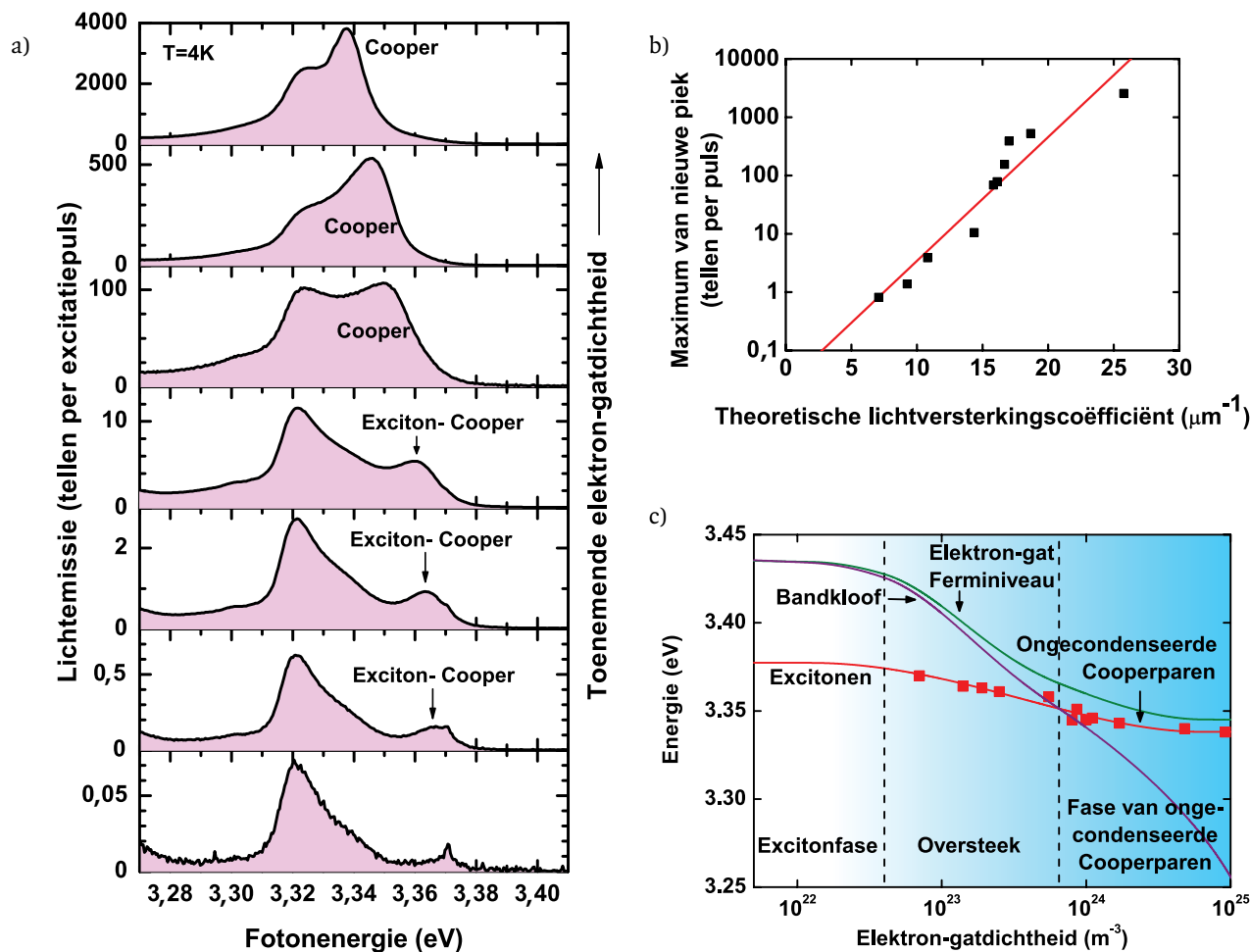
Figuur 4 laat de gemeten lichtemissiespectra van het ZnO-kristal zien bij hoge elektron-gatdichtheid en afnemende temperatuur. Bij 50 K is enkel licht zichtbaar van een elektron-gatplasma. Bij lagere temperatuur komt er aan de hoge-energiekant een nieuwe piek opzetten. Uit een vergelijking van deze spectra met theoretische spectra [5] concluderen wij dat deze piek afkomstig is van ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen. Figuur 4 toont dus de oversteek bij afnemende temperatuur van een elektron-gatplasma naar een gas met

Henk Stoof (1962) studeerde Technische Natuurkunde in Eindhoven. Na zijn promotie in Eindhoven had hij postdocposities in de groepen van Tony Leggett in Urbana-Champaign en Steve Girvin in Bloomington. Daarna ging hij naar Utrecht, waar hij sinds 1999 hoogleraar is in de theorie van de gecondenseerde materie. Hij kreeg een VICI-subsidie toegekend voor theoretisch onderzoek aan exotische quantumgassen, was Distinguished Simons Lecturer in New York en is Fellow van de American Physical Society. Zeer recentelijk ontving hij een NWO Zwaartekrachtpremie.



Jaap Dijkhuis (1950) studeerde natuurkunde en promoveerde aan de Universiteit Utrecht. Na een korte periode in het bedrijfsleven keerde hij terug naar Utrecht als medewerker bij de werkgroep Natuurkunde en Scheikunde van de Vaste Stof, de voorloper van het Debye Instituut. Daar werd hij in 1992 bijzonder hoogleraar en in 1999 gewoon hoogleraar in experimentele vaste-stoffysica. Sinds 2011 is hij hoofd van het Departement Natuur- & Sterrenkunde.





Figuur 5 Oversteek van excitonen naar ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen. a) Gemeten spectra bij 4 K voor dichtheden van elektronen en gaten toenemend van $1 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ (onderaan) tot $9 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ (bovenaan). Er verschijnt een nieuwe emissiepiek, aangeduid met 'Exciton-Cooper' voor emissie van elektronen en gaten in het oversteekgebied, en 'Cooper' voor emissie van ongecondenseerde Cooperparen. b) Hoogte van de nieuwe piek versus theoretische lichtversterkingscoëfficiënt: een exponentiële relatie. c) Vierkanten geven de gemeten spectrale posities van de nieuwe piek aan. Bij lage dichtheden valt deze binnen de bandkloof, duidend op excitonen. Bij hoge dichtheden bevindt de piek zich boven de bandkloof, nabij het elektron-gat-Ferminiveau, wat duidt op elektron-gat-Cooperparen.

ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen (zie ook figuur 2). De oversteek van een excitongas naar ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen is zichtbaar in de meetresultaten van figuur 5a. Bij de laagste elektron-gatdichtheid meten we bekende spontane-emissiepieken van een excitongas in ZnO. Bij hogere dichtheid vormt er zich een nieuwe piek, één die sneller met de dichtheid stijgt dan de andere pieken. Dit licht komt van elektron-gatparen in het oversteekgebied tussen excitonen en ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen. Analyse van de piekhoogten (figuur 5b) toont aan dat deze exponentieel afhangen van de theoretische lichtversterkingscoëfficiënt, zoals verwacht voor gestimuleerde emissie. Figuur 5c laat een analyse zien van de spectrale piekposities. Bij lage dichtheid valt de nieuwe piek binnen de bandkloof, wat consistent is met

lichtemissie van excitonen. Bij hoge dichtheid ligt de nieuwe piek boven de bandkloof, dicht bij het elektron-gat-Ferminiveau, waar elektron-gat-Cooperparen hun energieniveau hebben. Deze analyse bevestigt dat de gemeten spectra een oversteek laten zien van excitonen naar ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen.

Toekomst

Onze experimenten vormen de eerste waarneming van ongecondenseerde elektron-gat-Cooperparen. Ongecondenseerde Cooperparen, maar dan elektron-elektron-Cooperparen, spelen mogelijk een rol in hogetemperatuursupergeleiding. Wellicht kan deze studie van elektron-gat-Cooperparen in de toekomst bijdragen aan een beter begrip van hogetemperatuursupergeleiding. Onze berekening van het fasediagram (figuur 2) suggereert dat ook de su-

perfluide toestand bereikt zou moeten kunnen worden in een experiment. Bij het bereiken van die toestand zouden verschillende effecten kunnen plaatsvinden, zoals spontane polarisatie van het uitgezonden licht en toename van de elektrische weerstand. Echter, hoe de superfluide toestand precies kan worden gedetecteerd is een op dit moment nog onopgelost vraagstuk.

Referenties

- 1 H. Kamerlingh Onnes, *Commun. Phys. Lab. Univ. Leiden* **No. 122b** (1911).
- 2 J. Bardeen, L.N. Cooper, en J.R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **108**, 1175-1204 (1957).
- 3 L.V. Keldysh en Yu.V. Kopae, *Fiz. Tverd. Tela* **6**, 2791-2798 (1964) [Engelse vertaling: *Sov. Phys. Solid State* **6**, 2219-2224 (1965)].
- 4 C. Comte en P. Nozières, *J. Physique* **43**, 1069-1081 (1982).
- 5 M.A.M. Versteegh, A.J. van Lange, H.T.C. Stoof en J.I. Dijkhuis, *Phys. Rev. B* **85**, 195206 (2012).
- 6 C.A. Regal, M. Greiner en D.S. Jin, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 040403 (2004).