Wiskundige theorie van quasikristallen

Voordracht gehouden in de gewone vergadering van de Afdeling Natuurkunde der Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen op 26 januari 1987

WISKUNDIGE THEORIE VAN QUASIKRISTALLEN

N.G. de Bruijn

In 1984 werd door D. Shechtman *et. al.* [8] bij metallurgisch onderzoek een merkwaardige ontdekking gedaan. Bij zeer snelle afkoeling (enkele duizenden graden per seconde) van een vloeibaar mengsel van aluminium en mangaan kwam een nieuwe vorm van vaste stof voor den dag die in verschillende opzichten met kristalstructuur overeen kwam, doch daar in enkele andere opzichten sterk van afweek. Uiterlijk leek het niet op de ons bekende kristallen met mooie gladde grensvlakken. Maar bij Röntgenanalyse leverde deze nieuwe vorm van vaste stof vaak haarscherpe diffractiepatronen, die een hoge graad van inwendige orde verraadden.

Bij gewone kristallen kan men uit de diffractiepatronen afleiden tot welke van de eindig vele kristalklassen ze behoren (en vervolgens kan men proberen te berekenen hoe de verschillende atomen over de cellen verdeeld zijn).

De klassieke (van modern standpunt gezien misschien wat naïeve) opvatting beschrijft kristallen als puntroosters in de gewone driedimensionale ruimte. Elk roosterpunt wordt als plaats van een atoom opgevat. Er is periodiciteit in drie niet in één vlak gelegen richtingen (die overigens niet loodrecht op elkaar behoeven te staan); periodiciteit wil zeggen dat er een groep van translaties is die het rooster in zichzelf overvoert. Vervolgens is er een groep van ruimtelijke rotaties (en/of combinaties van translaties en rotaties) die het rooster eveneens invariant laat. De combinatie van deze translaties en rotaties levert de eindige lijst van kristalklassen op.

Als beeld van een kristal hebben we dus een puntrooster, waarbij de punten met atomen corresponderen. Afhankelijk van de aard van die atomen kan men aan de punten nog zekere gewichten toekennen, weer invariant bij de translaties en rotaties. Men kan dat rooster met gewichten als een gegeneraliseerde functie in de driedimensionale ruimte opvatten (gegeneraliseerd, omdat er geen echte functies bestaan die slechts in geïsoleerde punten punt van nul verschillen en toch een positieve integraal hebben; dit soort gegeneraliseerde functies staat bekend onder de naam van deltafuncties van Dirac).

Van een periodieke functie van één enkele veranderlijke (bijvoorbeeld de tijd) kan men de Fouriertransformatie beschouwen, die de afzonderlijke frequenties laat zien. Bij elke frequentie behoort een intensiteit (en ook een fase). Men kan die frequenties langs een lijn uitzetten en de intensiteitsfunctie als een gegeneraliseerde functie langs die lijn zien. De continue periodieke functie heeft dus een periodiek en discreet Fourierspectrum. Neemt men in plaats van de continue tijdsfunctie een periodieke opstelling van deltafuncties dan maakt dat voor het Fourierspectrum geen essentieel verschil.

De stap van één naar drie dimensies biedt geen moeilijkheid. Ook van een op de driedimensionale ruimte gegeven functie kan men een Fouriertransformatie maken, en wanneer de functie een periodiek rooster van deltafuncties representeert bestaat de Fouriertransformatie weer uit een stel discrete punten, eveneens in de vorm van een periodiek rooster. Dat rooster biedt een model voor het Röntgendiffractiepatroon, en wel op de volgende wijze. Met de richting van een evenwijdige bundel van Röntgenstralen correspondeert een vlak door de oorsprong in de ruimte waarin de Fouriertransformatie is opgetekend, en dit vlak snijdt in de Fouriertransformatie precies het Röntgendiffractiepatroon uit. Terloops zij hier vermeld dat het alleen de periodiciteit is die voor het discrete karakter van de diffractiepatronen zorgt. De rotatieïnvariantie van het kristal vormt een aardige bijkomstigheid, die ook weer leidt tot rotatieinvariantie van de Fouriertransformatie. Het is tengevolge van dit laatste dat men zo gemakkelijk de groepsstructuur van het kristal uit het Röntgendiffractiepatroon afleest.

De door Shechtman *et. al.* gevonden diffractiepatronen (zoals bijvoorbeeld fig. 1) vertoonden merkwaardigerwijze een 5-tallige symmetrie waarvan bij de gewone kristallen de onmogelijkheid vaststond. Bovendien lagen de punten van dat patroon niet geheel gescheiden van elkaar, maar (met afnemende intensiteiten) overal dicht in het vlak. Men zou voor een compleet mysterie hebben gestaan wanneer niet kort tevoren van theoretische zijde iets dergelijks was beschreven. Door wiskundigen waren niet-periodieke kristalachtige structuren in twee dimensies gebouwd met min of meer de hier gewenste eigenschappen, en door kristallografen (bijvoorbeeld [6]) was opgemerkt dat hetzelfde kon worden gedaan in de driedimensionale ruimte, waarbij structuren met een soort icosaedersymmetrie aan het licht waren getreden. En later werd vastgesteld dat de Fouriertransformaties van deze wiskundige structuren voortreffelijk met de in het laboratorium gemaakte plaatjes overeenstemden.

Omstreeks 1975 ontdekte R. Penrose een tweetal vlakke figuren met de volgende merkwaardige eigenschap. Maakt men oneindig vele tegels als kopieën van deze twee, dan lukt het op oneindig vele manieren er het vlak geheel (zonder overlapping en zonder gaten) mee te vullen, maar op geen enkele manier lukt het om dat periodiek te doen. In [7] en [5] werd dit vooral vertoond met de bekende "kites" en "darts", maar het is in verschillende opzichten eenvoudiger om uit te gaan van de bepijlde ruiten (ook van Penrose) uit fig. 2. Er wordt daarbij de conditie gesteld dat bij het aanleggen enkele pijlen langs enkele pijlen vallen en dubbele langs dubbele, in beide gevallen met overeenstemming van richting. (Met een door de graficus M.C. Escher veelvuldig toegepaste werkwijze kunnen de pijlen door kromme lijnen worden vervangen, waardoor de ruiten in fantasiefiguren als vogels en vissen overgaan; het is ook mogelijk om met deze truc tot de kites en darts te komen.) Fig. 3 geeft een deel van zo'n Penrose-patroon.

In 1981 werd vastgesteld ([1]) dat de Penrose-patronen door dualisatie zijn te verkrijgen uit zeer eenvoudige en regelmatige figuren, de zogenaamde pentagrids (in algemener situaties kan men van multigrids spreken). De dualisatie gaat als volgt. In elke ruit van een Penrose-patroon verbindt men de middens van de paren overstaande zijden. Al deze verbindingslijnen samen vormen een stel kromme lijnen dat men de duale figuur noemt. In fig. 3 is een paar van deze krommen als stippellijnen aangegeven. Bij elk van deze krommen behoort een lijnstuk dat de richting en lengte aangeeft van de zijden van de Penrose-ruiten die door die kromme gesneden worden. Omgekeerd kan men van de duale figuur uitgaan, en bij elke kromme een lijnstuk kiezen. Onder vrij algemene omstandigheden kan men dan bewijzen dat daarmee een betegeling van het vlak correspondeert. Kiest men alle toegevoegde lijnstukken gelijk in lengte, dan worden deze tegels ruiten, en wanneer de richtingen van de lijnstukken onderling hoeken maken die veelvouden zijn van 36°, dan komen de ruiten van Penrose te voorschijn. In het algemeen lukt het echter niet om overal de pijlen aan te brengen in overeenstemming met fig. 1.

Dit plaatsen van de pijlen lukt wèl wanneer als duale figuur een pentagrid wordt gekozen en bij elke lijn van het pentagrid het lijnstuk dat daarbij gekozen moet worden loodrecht op die lijn wordt genomen. Een pentagrid (zie fig. 4) is de superpositie van vijf lijnroosters. Elk daarvan bestaat uit een volledig stelsel evenwijdige lijnen met onderlinge afstanden 1, en de lijnen van de 5 lijnroosters maken onderling hoeken die veelvouden van 72° zijn. Er zijn 5 graden van vrijheid, doordat elk der 5 lijnroosters nog in de richting loodrecht op zijn eigen lijnen kan worden verschoven. Het pentagrid wordt dus door 5 reële getallen (parameters) bepaald. We fixeren een punt in het vlak (de oorsprong), en spreken af dat elke parameter nul is wanneer het betreffende lijnrooster de oorsprong bevat. Wanneer men nu nog de eis stelt dat de som van de 5 parameters een geheel getal is, kan men bewijzen dat de duale figuur van het pentagrid op precies één manier door plaatsing van enkele en dubbele pijlen tot een Penrose-patroon kan worden gemaakt. En omgekeerd kan elk Penrose-patroon uit een dergelijk pentagrid worden verkregen. Een kleine correctie moet worden aangebracht voor de uitzonderlijke gevallen waarbij er ergens drie roosterlijnen door eenzelfde punt gaan (als dat ergens gebeurt dan gebeurt dat oneindig vaak).

De afzonderlijke lijnroosters van het pentagrid zijn periodieke structuren, maar dat kan van de superpositie van die 5 lijnroosters niet meer gezegd worden. Periodiciteit moet daar worden vervangen door een vorm van bijnaperiodiciteit, een begrip dat in de jaren twintig door H. Bohr werd ingevoerd. Dit bijnaperiodieke karakter van het pentagrid vindt men terug in dè duale figuur, evenals men als duale figuur van een periodieke structuur weer een periodieke vindt.

Bijnaperiodieke functies hebben evenals periodieke functies een Fourierspectrum dat uit discrete punten bestaat, maar die punten zijn in het algemeen niet meer te beschrijven als gehele veelvouden van eenzelfde getal. Analoog constateren we dat het (tweedimensionale) Fourierspectrum van een Penrose-patroon een overal dicht liggende verzameling van discrete punten vormt. Deze kunnen worden verkregen door uit te gaan van 5 eenheidsvectoren die onderling hoeken van 72° maken, en daarvan alle lineaire combinaties met gehele coëfficiënten te nemen. Doordat het duale van het pentagrid op vrij eenvoudige wijze analytisch kan worden voorgesteld, is de Fouriertransformatie van de Penrose-patronen volledig berekenbaar (zie [2], ook voor generalisaties en verdere literatuur).

Generalisaties zoals de overgang van twee naar meer dimensies bieden wel enkele moeilijkheden doch weinig verrassingen. Men kan bijvoorbeeld in de driedimensionale ruimte uitgaan van de 6 diagonalen van een regelmatig 20-vlak (ikosaeder). Bij elke diagonaal neemt men een volledig stel evenwijdige vlakken

FIGUREN

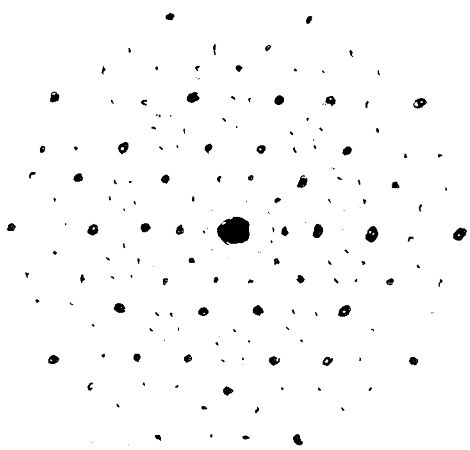

Fig. 1. Röntgendiffractiepatroon van een quasikristal

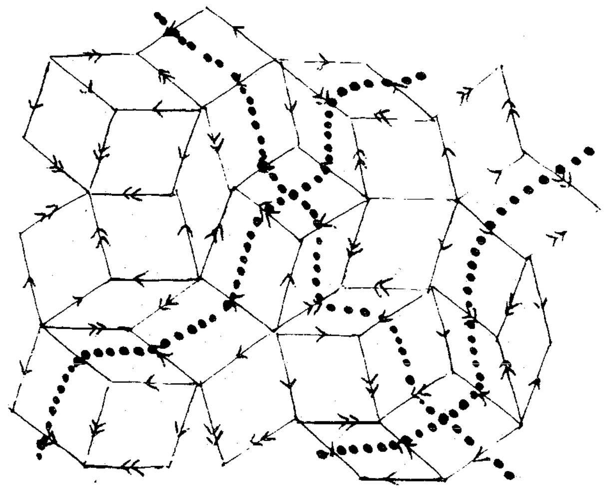

Fig. 3. Een stuk van een Penrose-patroon, met (gestippeld) enkele krommen van de duale figuur

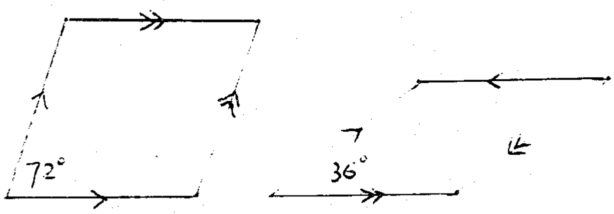

Fig. 2. De Penrose-ruiten met pijlen

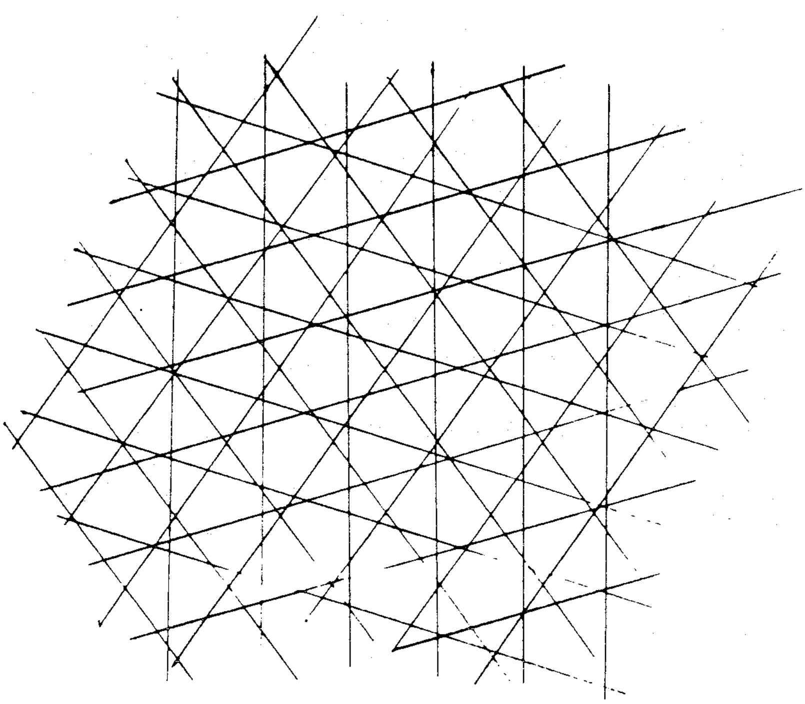

Fig. 4. Een stuk van een pentagrid

met onderlinge afstand 1, en vormt zo een hexagrid. Bij elk der 6 vlakroosters neemt men een lijnstuk loodrecht op die vlakrichting, en gaat men de duale figuur opbouwen geheel naar het tweedimensionale voorbeeld. Dan ontstaat er een volledige opvulling van de ruimte met slechts 2 verschillende figuren: een dik en een dun ruitenparallelopipedum. Het kost in dit geval (en in andere genaralisaties) enige moeite om in te zien dat deze parallelopipeda de ruimte zonder overlapping en zonder gaten opvullen. Dit is niet alleen lokaal maar ook globaal een probleem; voor een algemeen geformuleerde oplossing verwijzen we naar [3].

Het puntrooster dat door dualisatie van een multigrid ontstaat, kan men ook beschrijven door projectie van een gewoon kubisch rooster uit een ruimte van hogere dimensie. Zo waren in [1] de Penrose-patronen beschreven door in de 5-dimensionale ruimte een 2-dimensionaal vlak te nemen, en na te gaan welke kubussen van het rooster dat vlak snijden. Projecteert men de middelpunten van de betreffende kubussen op dat vlak, dan komt het Penrose-patroon voor de dag. Dit is niets anders dan een herformulering van de multigriddualisatie, maar die is onder de naam "cut-and-project" een zelfstandig leven gaan leiden.

Men zou kunnen afspreken de naam quasikristallen toe te kennen aan de duale figuren van multigrids, ook zonder dat aan de richtingen van die multigrids eisen van symmetrie worden opgelegd. Het is namelijk zeer de vraag of zulke symmetrie van allesoverwegend belang is. Bij de wiskundige behandeling kan men symmetrie tot het allerlaatst uitstellen: kwesties van ruimtevulling en Fouriertransformatie kunnen geheel los van symmetrie worden gezien.

Men zou de definitie van het begrip quasikristal ook ruimer kunnen stellen, door te zeggen dat het uit discrete punten opgebouwde structuren zijn waarvan ook de Fouriertransformatie discreet is. Een flinke klasse van voorbeelden wordt gevormd door "gemoduleerde" quasikristallen ([4]). Deze worden gevonden door uit te gaan van de duale figuur van een multigrid en vervolgens aan de punten (atomen) verplaatsingen te geven. Dit gebeurt wel op zekere regelmatige wijze, maar verstoort niettemin het karakter van uit parallelopipeda opgebouwde structuur. Waar het op aan komt is dat deze modulaties het Fourierspectrum onaangetast laten. Alleen de intensiteiten en fases van het diffractiepatroon kunnen er door veranderen. Deze gemoduleerde structuren zouden misschien zelfs meer fysische betekenis kunnen hebben dan de niet-gemoduleerde.

Tot nu toe is het oorspronkelijke tweedimensionale geval van Penrose het enige waarbij het lukte om bij de parallelopipeda aansluitcondities (bijvoorbeeld in de vorm van enkele en dubbele pijlen) vast te leggen die garanderen dat daarmee uitsluitend duale figuren van multigrids (of althans structuren met discreet Fourierspectrum) kunnen worden gevormd. Zulke aansluitcondities zouden een belangrijke sleutel kunnen zijn voor de groei van quasikristallen. Laat men bijvoorbeeld in het geval van de Penrose-ruiten groei toe die de pijlen negeert, dan komt er van een Fourierspectrum niets terecht.

In elk geval zijn er nog genoeg vragen overgebleven in dit fascinerende samenspel van theorie en praktijk.

Literatuur

1 Bruijn, N.G. de - Algebraic theory of Penrose's non-periodic tilings of the plane. Kon. Nederl. Akad. Wetensch. Proc. Ser. A 84 (= Indagationes Mathematicae 43), 38-52 and 53-66 (1981).

2 Bruijn, N.G. de - Quasicrystals and their Fourier transform. Kon. Nederl. Akad. Wetensch. Proc. Ser. A 89 (= Indagationes Mathematicae 48), 123-152 (1986).

3 Bruijn, N.G. de - Dualization of multigrids. In: Proceedings of the International Workshop Aperiodic Crystals, Les Houches 1986. Journal de Physique, Vol. 47, Colloque C3, supplement to nr. 7, July 1986, pp. 9-18.

4 Bruijn, N.G. de - Modulated quasicrystals. Is aangeboden voor: Kon. Nederl. Akad, Wetensch. Proc. Ser. A90 (= Indagationes Mathematicae 49) (1987).

5 Gardner, M. - Mathematical games. Extraordinary nonperiodic tiling that enriches the theory of tiles. Scientific American 236 (1), 110-121 (Jan. 1977).

6 Kramer, P. and R. Neri - On periodic and non-periodic space fillings of E^m obtained by projection. Acta Cryst. A 40, 580-587 (1984).

7 Penrose, R. - The role of aesthetics in pure and applied mathematical research. Bull. Inst. Math. Appl. 10, 266-271 (1974).

8 Shechtman, D., I. Blech, D. Gratias and J.W. Cahn - Metallic phase with long-range orientational order and no translational symmetry. Physical Review Letters, 53(20), 1951-1953 (1984).