

Mikrohullámú spektroszkópia fejlesztése időtartománybeli detektálással

Gyüre-Garami Balázs

Témavezető: Dr. Simon Ferenc

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem

Budapest

2020. május 4.



M Ű E G Y E T E M 1 7 8 2

Bevezetés és motiváció

A szilárdtestfizikában elért eredmények teljesen átformálták a világunkat. Az anyagok tulajdonságainak mély megértése olyan technológiák alkalmazását tette lehetővé, amelyek alapvető fontosságúak társadalmunk számára. Nagy sebességű, kis méretű elektronikai eszközök, tiszta, megújuló energiaforrások, kontinenseken átívelő olcsó és egyszerű kommunikáció, új képalkotó eljárások és implantátumok az orvostudományban. Ezek egyike sem volna lehetséges olyan tudósok munkája nélkül, akiknek a célja, hogy a nap mint nap előállított új anyagok mikroszkópikus felépítést és viselkedést megértsék. Ha csak általánosságban a félvezetőkre, illetve a szilíciumra gondolunk, világossá válik, hogy az alapkutatás az első lépés az elkövetkezendő technológiai forradalmak felé.

Számos eszköz áll rendelkezésünkre a szilárdtestfizika tudományának további feltárására. Az új anyagok megértése az elméleti fizikusok munkája, de az elméleti tételek alátámasztásának vagy cáfolatának kísérleteken kell alapulniuk. A kísérleti fizikus számára az elméletek megértése, a vizsgált anyagok mintáinak szintetizálása, és a megfelelő eszközök rendelkezésre állása mind szükséges, hogy méréseit elvégezhesse. Mivel fizikusként a világ megértésének aktuális határain mozgunk, nekünk kell megértenünk és fejlesztenünk a vizsgálatokhoz szükséges berendezéseket. Tanulnunk kell más tudományos és mérnöki területek szakértőitől is, hogy a munkánkhoz szükséges technológiai fejlesztések megvalósulhassanak. Gyakran ezek az új tech-

nológiák tovább szélesítik az elvégezhető kutatások körét is. Erre egy példa az pásztázó alagútmikroszkóp feltalálása, mely során néhány egyszerű ötlet nyomán munkánk egyik alapvető eszköze született meg. Munkánkat tehát folyamatosan más tudósok és mérnökök ötleteit megismerve, velük együttműködve kell végeznünk.

A kutatási téma és a motivációja

A tudomány számos területén megfigyelhető, hogy a frekvenciatartományú mérési technológiákat folyamatosan felváltják az időtartományban alkalmazott megoldások. Így rövidebb idő alatt, nagyobb érzékenységgel végzett mérések válnak lehetővé, melyek bizonyos esetekben akár egészen új kutatási területeket is megnyithatnak.

Az időtartományú módszerek forradalmasították a magmágneses rezonancia (NMR) spektroszkópiát. Korábban keskeny rezonanciák méréséhez állandó frekvenciájú (CW) forrásokat alkalmaztak, melyek a jel frekvenciáját egyáltalán nem, vagy csak lassan változtatták. Ezt a megoldást váltotta fel az atommagok rövid RF impulzusokra adott válaszána mérés időtartományban, amiért 1991-ben R. R. Ernst Kémiai Nobel-díjat kapott. A fejlesztés növelte a mérések érzékenységét, felbontását és pontosságát, aminek köszönhetően a mágneses rezonancián alapuló képalkotó eljárások széleskörűen elterjedté váltak a biológiai tudományokban, az orvostudományban és a szilárdtest spektroszkópiában.

Célok

A fenti ötletet alapul véve céлом volt egy mikrohullámú rezonátorok tulajdonságainak mérésére szolgáló vizsgálati módszer fejlesztése, mely széleskörű felhasználásra alkalmas. Az ipari folyamatok mellett (pl. fűtési megoldások) a rezonátoros méréseket az úgynevezett üreg-perturbációs módszer során alkalmazzák, mely a kísérleti szilárdtestfizikában egy elterjedt mérési módszer az anyag tulajdonságainak kontaktusmentes vizsgálatára, beleértve a elektromos permittivitás, mágneses permeabilitás és elektromos vezetőképesség vizsgálatát.

Klasszikusan egy üreg paramétereit frekvenciasöpréssel vagy -modulációval mérjük. Doktori munkám során a mikrohullámú rezonátorok tranziens viselkedését vizsgáltam, és kidolgoztam egy nagy érzékenységű, tranziens válaszokon alapuló mérési módszert. Továbbfejlesztettem az új megoldást egy visszacsatolt rezonátor alkalmazásával, ezzel növelve a stabilitást és érzékenységet, valamint csökkentettem az eszköz komplexitását. Megvizsgáltam, az új módszerek minőségét, és összehasonlítottam azokat az irodalomban fellelhető technikákkal. Az új mérési eljárások jelentős javulást mutattak a hagyományos technikákhoz képest a jel-zaj viszony, az időfelbontás és a stabilitás szempontjából.

A disszertációmban bemutatom az új módszerek két alkalmazását. Az új módszerekkel egyfalú szén-nanocsövek vizsgálatát végeztem, és sikerült megmagyarázni egy alacsony hőmérsékletű anomália eredetét, mely témája volt

az utóbbi évek számos kutatásának. Továbbá mikrohullámokkal detektált fotovezetékes méréseket végeztem adalékoltalan és adalékolt szilikon wafereken, kihasználva a módszer nagyfokú érzékenységét és időfelbontását, így olyan mintákon is végezhesünk méréseket, melyek a korábbi eljárásokkal nem voltak vizsgálhatók. Ez utóbbi mérés jól demonstrálja a módszerben rejlő lehetőségeket.

A disszertáció tartalma

A disszertáció felépítése a következő: az első fejezet bevezetése után a második fejezetben munkám elméleti hátterét mutatom be. A távíró egyenletek elméletének vonatkozó részeivel kezdem, és ennek alkalmazásával az elektromosmágneses hullámok terjedési tulajdonságait vizsgálom különböző közegekben. Bevezetem a felületi impedancia fogalmát, valamint a rádiófrekvenciés hullámterjedés és optika kapcsolatát. Ezután kifejtem az RF rezonátorok elméletét, beleértve a tranziens jelenségeket, melyek alapvető fontosságúak a munkám szempontjából. Ezt követően az üregperturbációs módszerek áttekintésével folytatom. A mérési összeállításban a zaj forrásának és megjelenésének tárgyalása után az időtartományi mérések általános előnyeit taglalom a frekvencia tartományú spektroszkópiával szemben.

A harmadik fejezetben a munkám során alkalmazott kísérleti technikákat mutatom be. Tárgyalom a mérendő jelek alacsonyabb frekvenciára való lekeverésének módszerét,

és a Fourier-transzformáció alapvető matematikáját. Végül a mikrohullámmal detektált fotovezetés lecsengésének mérésén alapuló módszerét ismertetem.

A negyedik fejezetben az eredményeimet tárgyalom, nevezetesen a mikrohullámú rezonátorok paramétereinek időtartománybeli méréseire irányuló fejlesztéseket. A technika egy továbbfejlesztésével folytatom visszacsatolt rezonátort építve az összeállításba. Tárgyalom a módszerem domináns zajforrásait és minőségi mutatókat határozok meg a különböző módszerek összehasonlításához. Végül bemutatom az új módszerrel végzett vizsgálatokat, melyekkel magyarázatot adok az egyfalú szén-nanocsövek nemlineáris mikrohullámú abszorpciójára, valamint üregek tranzienének mérésével mikrohullámmal detektált fotokonduktív lecsengést.

Az ötödik fejezetben összegzem a doktori munkámat és felsorolom a tézispontokat.

Tézispontok

1. Új módszert fejlesztettem a mikrohullámú rezonátorok rezonanciafrekvenciájának és jósági tényezőjének meghatározására, mely gyorsabb, stabilabb, és felépítésében egyszerűbb, mint az eddig létező mérési technikák. A rezonátort egy rezonanciafrekvenciájától távol eső frekvencián gerjesztjük, majd a mikrohullámú jel kikapcsolása után a rezonátor egy lecsengő jelet bocsát ki a sajátfrekvenciáján. A lecsengő jel lekeve-

rése és digitalizálása után a Fourier-transzformáció közvetlenül a rezonanciagörbéhez vezet, mely alapján a rezonátor paraméterei meghatározhatóak [T1].

Új minőségi mutatókat határoztam meg, melyekkel a rezonátorok sajátfrekvenciájának és jósági tényezőjének mérési módszerei összehasonlíthatóak. Az új mutatókat a rezonátorokon végzett mérések jósági tényezőtől független értékelésének szükségessége motiválta. Ultra-magas jósági tényezőjű rezonátorok vizsgálatáról íródott cikkekben ugyanis ismétlődően túlságosan magas minőségi értékelés olvasható, ám az új minőségi mutatókat alkalmazva kiderül, hogy a különböző technikai megvalósítások hasonló minőséget eredményeznek, mely független a rezonátor jósági tényezőjétől [T1].

2. Továbbfejlesztettem a rezonátorok paramétereinek időtartománybeli mérését. A mikrohullámú rezonátort egy visszacsatolt rendszerbe helyeztem, ahol az erősítő kimenete a saját bemenetéhez vezet egy sávszűrőn és a rezonátoron át. Ez olyan oszcillációt eredményez, melynek frekvenciája automatikusan hangolódik a megfelelő frekvenciára, melyet az üregbe helyezett minta tulajdonságai kismértékben megváltoztatnak. Az egyensúlyi frekvencia elérése után a visszacsatolt kört egy gyors mikrohullámú kapcsoló szakítja meg, és a rezonátor tranziens jele lekeverés után detektálható. A mért időfüggő jel Fourier-transzformációja után közvetlenül megkapjuk

a rezonátora jellemző paramétereiket [T2].

Az időtartománybeli módszereket is értékelve megmutattam, hogy azok jelentősen (akár két nagyságrenddel) felülmúlják a jelenleg létező technikák jel-zaj viszonyát [T2]. Meghatároztam a zaj eredetét az időtartományú módszerekben, és megadtam a zaj minimumát [T2].

3. Tanulmányoztam az anomális nemlineáris mikrohullámú abszorpciót egyfalú szén-nanocsövekben alacsony hőmérsékleten (20 K alatt) az időtartományú mérési módszerrel. Régóta vita tárgya, hogy a jelenség valódi elektromos vagy termikus viselkedés eredménye. Megállapítottam, hogy az anomáliának rendkívül lassú dinamikája van, megközelítőleg néhány száz másodperces. Ez határozottan arra utal, hogy a jelenség nem alapvető elektromos hatásokkal magyarázható, hanem a minta és a közeg közötti lassú hőcsere okozza [T3].
4. Kidolgoztam egy új módszert félvezetők fotoindukált vezetőképességének mérésére mikrohullámú rezonátorokkal. A korábbi technikákkal csak bonyolult modellezéssel és lassú idődinamikával (néhány ms alatt) kaptuk meg az anyag paramétereit. Az új megközelítéssel közvetlenül megkaphatók a rezonátor jellemzői, melyek kapcsolatban állnak az anyag tulajdonságaival. A megoldásom a mikrohullámú üreg tranziens válaszának mérésén alapszik. Míg az eljá-

rásra jellemző a rezonátorok minden ismert előnye az érzékenység és pontosság szempontjából, a végső időfelbontást csak a rezonátor időállandója limitálja, ami akár néhány 100 ns is lehet [T4].

A tézispontokhoz kötődő publikációk:

[T1] B. Gyüre, B. G. Márkus, B. Bernáth, F. Murányi, and F. Simon: *A time domain based method for the accurate measurement of Q -factor and resonance frequency at microwave frequencies*, Review of Scientific Instruments **86**, 094702 (2015).

[T2] B. Gyüre-Garami, O. Sági, B. G. Márkus, and F. Simon: *A highly accurate measurement of resonator Q -factor and resonance frequency*, Review of Scientific Instruments **89**, 113903 (2018).

[T3] B. G. Márkus, B. Gyüre-Garmi, O. Sági, G. Csósz, F. Márkus, and F. Simon: *Heating causes non-linear microwave absorption anomaly in single wall carbon nanotubes*, Physica Status Solidi B **255**, 1800258, (2019).

[T4] B. Gyüre-Garami, B. Blum, O. Sági, A. Bojtor, S. Kollarics, G. Csósz, B. G. Márkus, J. Volk, and F. Simon: *Ultrafast sensing of photoconductive decay using microwave resonators*, Journal of Applied Physics **126**, 235702 (2019).

Egyéb publikációk, melyek a munkámhoz köthetőek, ám a tézispontokban nem szerepelnek:

[5] S. Dzsaber, M. Negyedi, B. Bernáth, B. Gyüre, T. Fehér, C. Kramberger, T. Pichler, F. Simon, *A Fourier transform Raman spectrometer with visible laser excitation*, Journal

of Raman Spectroscopy **46** 327 (2015).

[6] M. Negyedi, J. Palotás, B. Gyüre, S. Dzsaber, S. Kolarics, P. Rohringer, T. Pichler, F. Simon: *An optically detected magnetic resonance spectrometer with tunable laser excitation and wavelength resolved infrared detection*, Review of Scientific Instruments **88**, 013902 (2017).

[7] I. Gresits, Gy. Thuróczy, O. Sági, B. Gyüre-Garami, B. G. Márkus, F. Simon: *Non-calorimetric determination of absorbed power during magnetic nanoparticle based hyperthermia*, Scientific Reports **8**, 12667 (2018).

[8] B. G. Márkus, G. Csósz, O. Sági, B. Gyüre-Garami, V. Lloret, S. Wild, G. Abellán, N. M. Nemes, G. Klupp, K. Kamarás, A. Hirsch, F. Hauke, F. Simon: *Electronic properties of air-sensitive nanomaterials probed with microwave impedance measurements*, Physica Status Solidi B **255**, 1800250, (2018).