

# Az atomi felbontású neutron holográfia alkalmazási lehetőségeinek vizsgálata

TÉZISFÜZET

Szakál Alex

Témavezető: Dr. Cser László

2017



M Ű E G Y E T E M 1 7 8 2

**Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi  
Egyetem**



**MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont**



## Bevezetés

Szilárdtestek szerkezetvizsgálatára jól kidolgozott módszerek széles spektruma áll a kutatók rendelkezésére. A szerkezetvizsgálat módszerei között kiemelkedő helyet foglalnak el a diffrakciós módszerek, amelyekkel a szilárdtestet alkotó atomok helyzete vizsgálható, de széleskörűen elterjedtek a direkt képalkotó eljárások is, amelyekkel nagyobb, általában nanoméretű struktúrákat vizsgálnak. Ezek a módszerek jól kidolgozottak, de sajnos nem tudnak a szerkezet vonatkozásában minden kérdésre választ adni. Ilyen nyitott kérdés még az anyagokban található lokális atomi és mágneses szerkezetek és torzulások mérése. A diffrakciós módszerek a mikroszkópiai módszerekkel szemben a minta szerkezetének sok atomot tartalmazó részéről vesznek átlagot, ezért a minta átlagos szerkezetét írják le. A lokális szerkezetek, rácsstorzulások vizsgálatánál a diffrakciós módszerek ezen tulajdonsága azonban hátrányos abban az esetben, ha a torzulást okozó atom koncentrációja alacsony. Ilyen esetekben korlátozott információkat kaphatunk a rácsstorzulásokról a statikus diffúz szórás vizsgálatával, azonban ezek általában szimulációkon és modellfüggvények illesztésén alapulnak. Az atomi felbontású holográfia módszere ötvözi a diffrakciós módszerek átlagoló tulajdonságát a mikroszkópiai módszerek direkt képalkotásával, így ezzel a módszerrel a kiválasztott atomok körüli átlagos környezetről kapunk képet.

Gábor Dénes célja a holográfia megalkotásakor az elektronmikroszkópok felbontásának javítása és az atomi felbontás elérése volt [1]. Az elektronmikroszkópokban használt elektronok hullámhossza elméletben lehetővé tette az atomi felbontás elérését, de a mágneses lencsék tökéletlenségei miatt ez nem volt lehetséges. A mágneses lencsék használatának elkerülése érdekében javasolta Gábor Dénes azt az új, kétlépéses eljárást, amelyet ma holográfia néven ismerünk. Az első lépésben rögzítjük a tárgy hullám és egy koherens referenciahullám interferenciáját, azaz a hologramot. A tárgy képét úgy kaphatjuk vissza, hogy a hologramot megvilágítjuk a referenciahullámmal. Többek között az elektronforrások kis koherenciahossza miatt azonban a módszerrel nem sikerült az atomi felbontás elérése, de a lézerek megalkotása után a módszer széleskörű alkalmazásra talált és a mai napig intenzíven kutatott terület. Az atomi felbontású holográfia ötlete 1986-ban merült fel újra, amikor Szőke Ábrahám javasolta, hogy a forrás szerepét a minta egyik atomja töltsse be [2]. Ezzel egyszerre több problémát is megoldott, mint például a tárgynyaláb és a referencianyaláb úthosszkülönbségének stabilitása és a koherencia problémák. Később ezt az ötletet felhasználva készítettek atomi felbontású hologramokat elektronnyalábok [3], Röntgen-sugárzás [4], gamma-sugárzás [5] és neutronok alkalmazásával is.

A belső forrásos és belső detektoros neutron holográfia elméletét Cser László írta le [6]. Kísérletileg az első belső forrásos neutron hologramot 2001-ben Sur és munkatársai rögzítették [7]. A belső detektoros neutron holográfia működését később Cser László és munkatársai demonstrálták [8]. A módszer szélesebb körű alkalmazását jelenleg a neutronforrások kis fényessége akadályozza, de az épülő Európai Spallációs forrás fényessége a mai források fényességét nagyságrendekkel meg fogja haladni, ezért a közeljövőben akár lehetségessé válhat a módszer rutinszerű felhasználása is.

## Célkitűzések

A doktori munkám célja a neutron holográfia olyan alkalmazási lehetőségeinek kutatása, amelyek kihasználják a neutronszórás holográfiára nézve előnyös tulajdonságait. A neutron nukleáris szórás esetén a magon izotrop módon szóródik, ami ideális a visszaállításhoz leggyakrabban használt Barton-féle rekonstrukciós módszer számára, így az atomok kevesebb torzítással jelennek meg a képen. Ezt a tulajdonságot egy ön egykristályban található kadmium szennyező körül kialakuló lokális rácstorzulások vizsgálatához használtam ki, ahol a tetragonális kristályszerkezet miatt a radiális elmozdulások mellett tangenciális elmozdulások is megjelentek. Céлом volt, hogy a szerkezet lokális deformációinak vizsgálatával magyarázatot adjak a minta makroszkopikus tulajdonságainak változására.

A neutron holográfiában felhasználható minták körét korlátozza, hogy a módszer használatához orientációs rendet mutató minta szükséges. Doktori dolgozatom célja volt, hogy megvizsgáljam, hogy visszanyerhető-e a központi atom körüli tárgyatomok radiális eloszlásfüggvénye egy polikristályon mért hologramból, illetve hogy meghatározzam a méréshez szükséges kísérleti paramétereket és a módszer felbontását.

A neutron a mágneses atomok párosítatlan elektronjain is szóródik, ezért a neutron-diffrakció a mágneses szerkezetek vizsgálatára is elterjedten használt módszer. Habár az irodalomban többször is felvetődött, hogy a neutron holográfia használható lehet mágneses szerkezetek vizsgálatára [9, 10], a doktori munkám kezdete előtt még nem vizsgálták a módszert részletesen. Doktori munkám célja volt, hogy a neutronok mágneses szórási amplitúdóját felhasználva felírjam a mágneses hologram egyenletét, továbbá, hogy olyan kísérleti elrendezést és visszaállítási módszert javasoljak, amelyekkel meghatározhatóak a detektoratom körüli mágneses atomok dipólusmomentum vektorai.

## Új tudományos eredmények

A dolgozatomban bemutatott új tudományos eredményeket az alábbi tézispontokban foglalom össze:

- T1** Egy kadmiummal szennyezett  $\beta$ -Sn egykristályon végzett holografikus mérés újraértékelésével meghatároztam a Cd szennyező körüli Sn befogadó rács képét. Két módszerrel, a csúcsmaximumokból valamint a csúcsmagasságokból is meghatároztam az ón atomok pontos térbeli pozícióját. A két módszerrel kapott csúcspozíciók megegyeztek, amiből azt a következtetést vontam le, hogy a képen megfigyelhető ón atomok pozíciójának termikus fluktuációja az egyensúlyi helyzet körül egyenlő nagyságú. A fogadó rács atomjai a szennyező atom felé mozdulnak, ami az irodalomban megtalálható röntgendiffrakciós mérési eredményekkel egyező tendenciát mutat. [P3]
- T2** Bebizonyítottam egy méreteffektust és Friedel-oszcillációt is figyelembe vevő modell alkalmazásával, hogy a kadmium körüli radiális eltolódásokban a méreteffektusnak van nagyobb szerepe. A háromdimenziós elmozdulásvektorok felhasználásával megmutattam, hogy a szennyező körüli rácson definiált  $c/a$  arány megnő, ami az ón alacsonyabb hőmérsékleten stabil  $\alpha$ -fázisára is jellemző, gyémántrács felé mutat. Ennek ellenére a kadmium hozzáadása lassítja a fázisátalakulást, amit a kadmium ón rácsot összehúzó hatásával magyaráztam. Megmutattam, hogy a kadmium körüli rácstorzulások létrehozásához olyan nyomásértékek szükségesek, ahol a  $\beta \rightarrow \alpha$  fázisátmenet már nem megy végbe. [P3]
- T3** Bebizonyítottam, hogy a neutron-holográfia módszere felhasználható polikristályos és amorf minták vizsgálatára. Ezzel a neutron holográfia elméleti alkalmazhatóságát az anyagok egy újabb csoportjára terjesztettem ki. Az egykristály-hologram átlagolásával kiszámítottam a holografikus jel hullámhosszfüggését, és megadtam egy módszert, amellyel meghatározható az atomi héjak távolsága a központi atomtól. [P1]
- T4** Kiszámítottam a polikristályos holográfia felbontását, megmutattam hogy a felbontás a méréshez használt hullámsávtól függ, míg a látótávolság a berendezés és a mérés k-felbontásától függ. Megmutattam, hogy a konstans relatív felbontással végzett mérés a látótávolság csökkenésén kívül csúcskiszélesedéshez és az

oldaloscillációk lecsökkenéséhez is vezet. PdH<sub>0.7</sub>-en mérhető hologramot az ISIS spallációs neutronforrásnál található SXD spektrométer paramétereinek figyelembevételével modelleztem, és megmutattam, hogy a berendezésen mérhető hologramból a hidrogén atom körül 8 Å távolságon belüli atomok képei szétválaszthatók. [P1]

**T5** A mágneses neutronsórás szórási amplitúdóját felhasználva felírtam a mágneses hologram egyenletét. Az így kapott hologram az alakfaktor és a mágneses polarizációs faktor megjelenése miatt jelentősen különbözik a nukleáris hologramtól, ezért a Barton-féle rekonstrukció általános esetben nem használható. Megmutattam, hogy az alakfaktor megjelenése csökkenti a mérési domén méretét, és hosszabb hullámhosszú neutronok alkalmazását teszi szükségessé. Megmutattam, hogy a polarizációs faktor neutronspin-függése miatt a nukleáris hologramot, az instrumentális háttérrel és a referenciahullám intenzitását ki lehet szűrni két ellentétes spinű neutronnyalábbal rögzített hologram egymásból történő kivonásával. [P2]

**T6** Megmutattam, hogy a polarizációs faktor megjelenése miatt a Barton-féle rekonstrukcióval a mágneses atom dipólusmomentum vektorának radiális komponensét határozhatjuk meg, amennyiben a méréshez használt neutronok a nyaláb haladási irányával párhuzamosan polarizáltak. A javasolt módszer alkalmazhatóságát a mágneses dipólusmomentum vektorok radiális komponensének meghatározására egy CuCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub> kristályra számított modellhologram kiszámításával és kiértékelésével demonstráltam. [P2]

**T7** Kidolgoztam egy korrelációs elven működő módszert, amellyel a hologram feldolgozása során a mágneses dipólusmomentum vektor komponensei szétválaszthatóak. Egy detektoratomból és egy tárgyatomból álló dimer segítségével vizsgáltam az optimális neutron hullámhossztartományt, és megmutattam, hogy egy hidegforrás megfelelő spektrumot szolgáltat a mérés kivitelezéséhez. Modellszámítások segítségével demonstráltam, hogy az alakfaktor figyelembevétele nem szükséges a kiértékeléshez, de használata az ikerképet csökkenti, ezért amennyiben lehetséges, figyelembe kell venni. A dimer hologramjának modellezésével megmutattam, hogy a polikromatikus hologramok használatával csökkenthetőek az atomok képei körül megjelenő oldaloscillációk és az ikerképek is, de ezzel a módszerrel a hamis csúcsokat csak kismértékben lehet csökkenteni. Megmutattam, hogy a mágneses

szerkezet kiértékeléséhez legalább  $8 \cdot 10^{12}$  beütés rögzítése szükséges. A korrelációs módszer alkalmazhatóságát a  $\text{CuCr}_2\text{O}_4$  tetragonális spinel hologramján demonstráltam. A korrelációs módszerrel kapott képen a csúcsok keskenyebbek mint a Barton-féle módszerrel kiértékelt hologramokon, továbbá a radiális irányra mérőleges dipólusmomentum-komponensek is megjelentek a képen. A szimulációk során azt tapasztaltam, hogy a monokromatikus hologramokból nem lehet megfelelő minőségű képet kapni, ezért a kísérleti megvalósításhoz mindenképpen polikromatikus hologramok rögzítését javasoltam. [P4]

## Tézispontokhoz kapcsolódó publikációk

- [P1] A. Szakál, M. Markó, G. Krexner, L. Cser,  
*Application of neutron holography to polycrystalline samples*  
Europhysics Letters, **111**, 26002, (2015)
- [P2] A. Szakál, M. Markó, L. Cser,  
*Local magnetic structure determination using polarized neutron holography*  
Journal of Applied Physics, **117**, 17E132, (2015)
- [P3] A. Szakál, M. Markó, L. Cser,  
*Local distortions revealed by neutron holography in SnCd<sub>0.0026</sub> alloy*  
Physical Review B, **93**, 174115, (2016)
- [P4] A. Szakál, M. Markó, L. Cser,  
*Imaging local magnetic structure by polarized neutron holography*  
Europhysics Letters, közlésre beadva

## További publikációim

- [P5] T. Hurtony, A. Szakál, L. Almásy, A. Len, S. Kugler, A. Bonyár, P. Gordon,  
*Characterization of the microstructure of tin-silver lead free solder*  
Journal of Alloys and Compounds, **672**, 13, (2016)
- [P6] A. Szakál, G. Krexner, A. Grill, G. Káli, M. Markó, L. Cser,  
*Preparation of metal-hydrogen systems for neutron-holographic experiments*  
Pollack Periodica, **9**, 111, (2014)
- [P7] L. Cser, G. Krexner, M. Markó, A. Szakál,  
*Neutron Holographic Imaging with Picometer Accuracy*  
Fundamentals of Picoscience, CRC Press – Taylor and Francis Group, pp. 161-179,  
(2013), ISBN:9781466505094
- [P8] L. Cser, G. Krexner, M. Markó, A. Szakál,  
*Neutron Holography – A Brief History and Overview*  
Neutron News, **23**, 17, (2012)



- [P9] A. Szakál, Sz. Czifrus, M. Markó, J. Füzi, L. Rosta, L. Cser,  
*Optimization of focusing supermirror neutron guides for low gamma-background*  
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, **634**, 130, (2011)
- [P10] M. Markó, G. Krexner, J. Schefer, A. Szakál, L. Cser,  
*Atomic resolution holography using advanced reconstruction techniques for two-dimensional detectors*  
New Journal of Physics, **12**, 063036, (2010)
- [P11] M. Markó, A. Szakál, Gy. Török, L. Cser,  
*Construction and testing of the instrument for neutron holographic study at the Budapest Research Reactor*  
Review of Scientific Instruments, **81**, 105110, (2010)



# Irodalomjegyzék

- [1] Stig Lundquist, editor. *Nobel lectures, Physics 1971-1980*, chapter Nobel Lecture: Holography, 1948-1971, pages 11–44. World Scientific Publisher Co., 1992. [1](#)
- [2] Abram Szöke. X-ray and electron holography using a local reference beam. *AIP Conference Proceedings*, 147(1):361–367, 1986. [1](#)
- [3] G. R. Harp, D. K. Saldin, and B. P. Tonner. Atomic-resolution electron holography in solids with localized sources. *Physical Review Letters*, 65(8):1012 – 1015, 1990. [1](#)
- [4] M. Tegze and Gy. Faigel. X-ray holography with atomic resolution. *Nature*, 380:49 – 51, 1996. [1](#)
- [5] P. Korecki, J. Korecki, and T. Slezak. Atomic resolution  $\gamma$ -ray holography using the Mössbauer effect. *Physical Review Letters*, 79(18):3518 – 3521, 1997. [1](#)
- [6] L. Cser, G. Krexner, and Török Gy. Atomic resolution neutron holography. *Europhysics Lett.*, 54:747–752, 2001. [2](#)
- [7] B. Sur, R.B. Rogge, R.P. Hammond, V.N.P. Anghel, and J. Katsaras. Atomic structure holography using thermal neutrons. *Nature*, 414:525–527, 2001. [2](#)
- [8] L. Cser, Gy. Török, G. Krexner, I. Sharkov, and B. Faragó. Holographic imaging of atoms using thermal neutrons. *Physical Review Letters*, 89(17):175504, Oct 2002. [2](#)
- [9] K. Ohoyama, K. Hayashi, and H. Hiraka. Importance of neutron scattering for materials science. *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology*, 9:422–425, 2011. [2](#)
- [10] T. Yamamoto, K. Hayashi, and T. Shishido. Ni<sub>2</sub>MnAl single crystals for magnetic scattering neutron holography. *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology*, 9:331–333, 2011. [2](#)