

# Atomi felbontású röntgen holográfia

Faigel Gyula – Tegze Miklós\*

## Előzmények

Napjainkban az iparban felhasznált anyagok tulajdonságait mind finomabban próbáljuk a felmerülő igényekhez hangolni. Ez akkor válik igazán lehetségessé, ha az egyes technológiai lépésekben kialakuló anyagok szerkezetét jól ismerjük a makroszkopikus szinttől egészen a pontos atomi elrendeződésig. Az alapanyagok és végtermékek mikroszkopikus szerkezetének ismerete ma már elengedhetetlen, a gyógyszergyártástól a félvezető iparon keresztül a repülőgépiparig. Ebből világosan kitűnik a szerkezet-meghatározó módszerek alapvető szerepe. A következőkben az atomi szintű szerkezet vizsgálatára alkalmas technikák közül egy új eljárás, az atomi felbontású röntgen holográfia első lépéseit mutatjuk be.

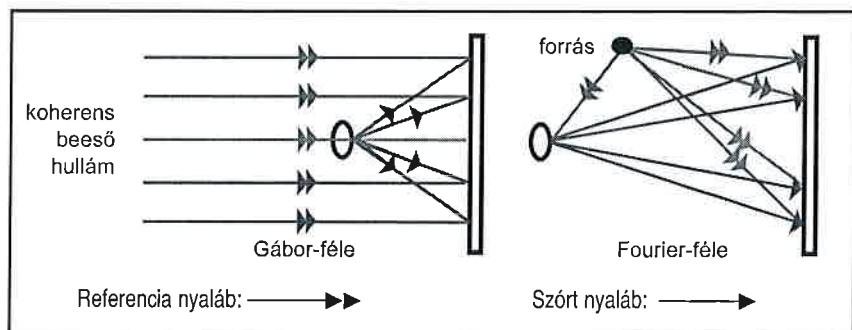
Ahhoz, hogy e módszert jól el tudjuk helyezni a többi atomi szerkezet meghatározására használt hagyományos eljárás között, röviden bemutatjuk a jelenleg használt technikákat. Ezeket két nagy csoportra oszthatjuk:

1. A valós térbeli elhelyezkedés közvetlen nagyított képét szolgáltató módszerek. Ilyen például néhány elektronmikroszkópos eljárás, pásztázó atomerő- és alagútmikroszkópia. Ezek elsősorban a felületről nyújtanak információt, és nem követelik meg az atomok kristályrácsba való rendeződését.

2. Diffrakciós módszerek. Ezek segítségével határozhatjuk meg a kristályos anyagokban uralkodó atomi rendet. Diffrakciós kísérleteket végezhetünk elektronokkal, neutronokkal vagy röntgen fotonokkal. Az utóbbiakkal még arra is lehetőség nyílik, hogy a felület alatti rétegeket, az anyag belsejét tanulmányozzuk. A diffrakciós módszereknek az a hátrányuk, hogy nem szolgáltatnak direkt képet a vizsgált rendszerről. A mért adatokat még transzformálnunk kell, hogy atomi koordinátákat kapjunk. Miért hátrány a transzformálás, hiszen napjainkban nagy teljesítményű számítógépek állnak a kutatók rendelkezésére? Ehhez tudnunk kell, mit mérünk egy diffrakciós kísérlet során. A diffrakciós mérések az egyes atomokról szórt hullámok összegeként létrejövő hullámok térbeli (irány szerinti) eloszlását adják. Egy hullámnak három jellegzetes paramétere van: a frekvenciája, az amplitúdója és a fázisa. A diffrakciós mérések esetén a frekvencia rögzített és ismert. A különböző irányokban terjedő hullámok amplitúdója és fázisa hordozza az atomi rendre vonatkozó információt. Mérőeszközeinkkel azonban csak az amplitúdók abszolút értékének négyzetét (az intenzitást, vagyis részecskeszámot) tudjuk mérni, a hullám fázisát nem. A valós térbeli elrendeződés egyértelmű előállításához azonban szükség van a fázisra is. Ezt a hiányt sok esetben pótolhatjuk valamilyen független mérésekből, vagy elméleti megfontolásokat használva. Persze sokat könnyítene a szerkezet-meghatározásban, és sokkal megbízhatóbb lenne, ha valahogyan egyetlen méréssel meghatározható lenne az intenzitás- és fázisinformáció is.

## A holografikus leképezés

Makroszkopikus objektumok alakjának és térbeli elhelyezkedésének rögzítésére már kidolgoztak ilyen módszert, és ez a holográfia, melyet *Gábor Dénes* kb. 50 éve alkotta meg [1]. Miért ne használhatnánk ezt a mikrovilágban is? Mielőtt ezt a kérdést megválaszolnánk, nézzük meg hogyan is működik a holográfia. Korábban azt írtuk, hogy detektorainkkal csak a részecskék számát tudjuk mérni, de a fázisát nem. Akkor a holográfiában hogyan határozuk meg a fázist? A válasz az, hogy a fázisváltozást átkonvertáljuk intenzitásváltozássá. *Gábor Dénes* alapötlete, hogy nem szükséges a hullámok abszolút fázisának ismerete, hanem elég, ha a fázist valamilyen ismert értékhez viszonyítva meg tudjuk határozni. Ezt a következőképpen tehetjük meg: A leképezni kívánt tárgyat megvilágítjuk egy koherens fényforrással. Ekkor a hullámok egy része szóródik az objektumon (tárgy hullám), egy másik része szabadon terjed (referencia hullám) a detektáló felület felé (1. ábra). Itt a két hullám összegét detektáljuk. Az intenzitásvizonyok attól függenek, hogy mekkora a fáziskülönbség a szórt



1. ábra. Hologramok felvételének két leggyakrabban alkalmazott módja: felül a Gábor-féle elrendezés, amikor a referencia nyaláb egy síkhullám, és alul a Fourier-féle elrendezés, amikor a referencia nyaláb egy pontszerű forrásból jövő gömbhullám

és a referencia nyaláb között. Ha a referencia nyalábot ismerjük, akkor ehhez képest már megkaphatjuk a szórt nyaláb fázisviszonyait a detektáló felületen rögzített képből. Tehát egy hologramot úgy képzelhetünk el, mint egy kódolt titkos üzenetet. A kódoló a referencia nyaláb, a kódolt üzenet a hologram és most már csak azt kell kitalálnunk, hogyan dekódoljunk. Megmutatható, hogy a hologramot megvilágítva a referencia nyaláb inverzével visszakapjuk az objektum háromdimenziós képét. Ez a hagyományos fényvel készült hologramok esetén a felvételkor használt forráshoz hasonló koherens fényvel való megvilágítást jelent.

## Az atomok holografikus leképezése

A dekódolást matematikailag is egyszerűen leírhatjuk és ekkor a hologramot digitalizálva (a számítógép memóriájába víve) a dekódolást a számítógépre bízva, a tárgy képét a képernyőn vizsgálhatjuk. Nos, ez nagyon egyszerűnek tűnik. Miért nem használjuk ezt a módszert az atomok világában is? Elvben semmi akadálya, de mielőtt ezt megpróbálnánk, meg kell vizsgálni, hogy mi az a legkisebb méret, amelyet adott kísérleti körülmények között még felbont a holografikus leképezés. Részletes elemzés azt mutatja, hogy ezt a megvilágító nyaláb hullámhossza és a detektor- és/vagy forrásméret határozza meg. Minthogy a fény hullámhossza kicsivel a

\* MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutató Intézet

mikrométer alá esik, nyilvánvaló, hogy hagyományos holográfiával az angstrom nagyságrendű atomi távolságokat nem vizsgálhatjuk. Ugyan napjainkban megjelentek rövidebb hullámhosszon működő koherens nyalábot biztosító hullámforrások (szinkrotron sugárforrásoknál elhelyezett ún. undulátorok), de a gyakorlatban ezekkel is csak kb. 500 Å felbontás érhető el. Tehát a hagyományos holográfia alkalmazása atomok leképezésére a mai technikai adottságok szerint nem lehetséges.

Ha mégis holografikus típusú leképezést akarunk alkalmazni az atomok világában, valamilyen méroben új ötletre van szükség. Egy ilyen ötletet kb. 10 éve Szőke Ábrahám vetett fel [2]. A megoldás lényege, hogy a vizsgálni kívánt minta saját atomjait kell használnunk mint hullámforrásokat. Ekkor a forrásméret probléma azonnal megoldódik, és amennyiben találunk olyan folyamatot, amelynek eredményeképpen az atomok 1 Å körüli hullámhosszúságú sugárzást bocsátanak ki, az atomi felbontás elérhető. Nem kell sokáig kutatnunk a fizika eszköztárában, hogy több ilyen lehetőségre is leljünk. Az atomok elektronjainak gerjesztése során az így magasabb energiájú állapotban maradt elektronrendszer relaxál, és a többlet energiáját fotonok, vagy elektronok formájában bocsátja ki. Jól megválasztva a kísérleti feltételeket, a kibocsátott részecskék hullámhossza a számunkra megfelelő tartományba esik. Úgy tűnik tehát, hogy ily módon sikerülhet az atomok holografikus leképezése. Ha azonban egy kicsit utána gondolunk, még egy fogas kérdés

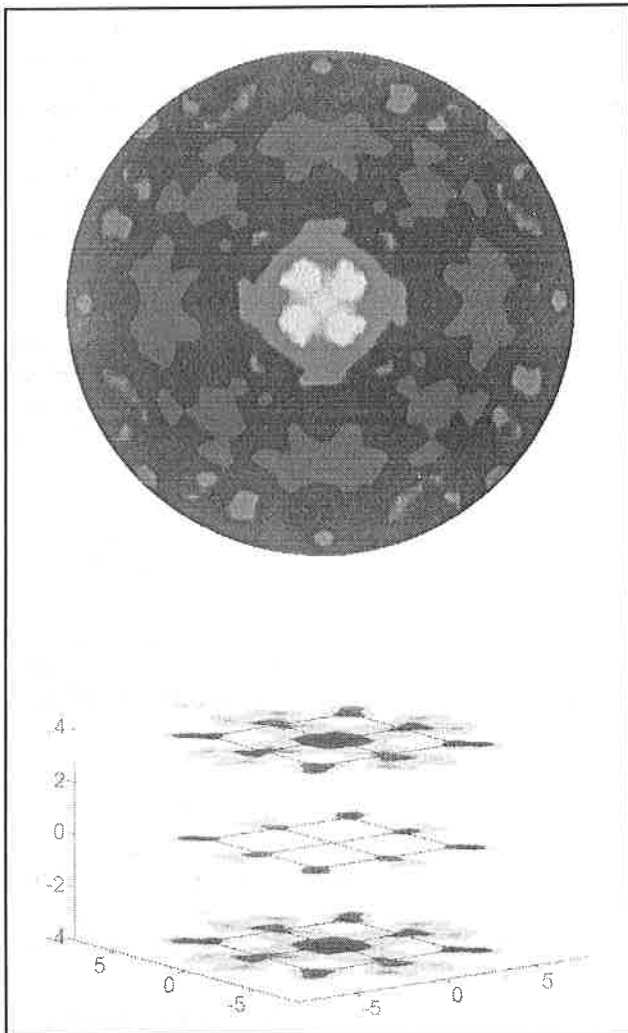
merül fel. Hogyan tudunk kiválasztani a minta igen nagyszámú ( $\sim 10^{23}$ ) atomja közül csak egyet, ami gerjesztődik és utána elektronokat vagy fotonokat bocsát ki. Ez a gyakorlatban nem lehetséges. Mit tehetünk akkor? Megfordíthatjuk a kérdést: tudunk-e olyan mintát készíteni, amelyben minden gerjesztett atomnak ugyanolyan a környezete? Ha igen, akkor minden forrásatom ugyanazt a hologramot fogja létrehozni és ezek összegét mérjük. Így az eredmény nem lesz más, mint az egy atom által létrehozott hologram szorozva a forrásatomok számával. Nos a természet kezünkre játszik, mivel a kristályokban egyes kiválasztott atomok környezete azonos.

Az előzőkben leírtaknak megfelelően 1996-ban el is végeztük az első sikeres atomi felbontású röntgen holografikus kísérletet [3]. Egy SrTiO<sub>3</sub> egykristályban a Sr atomokat gerjesztettük és az ezek által kibocsátott fluoreszcens sugárzást használtuk holografikus leképezésre (2. ábra).

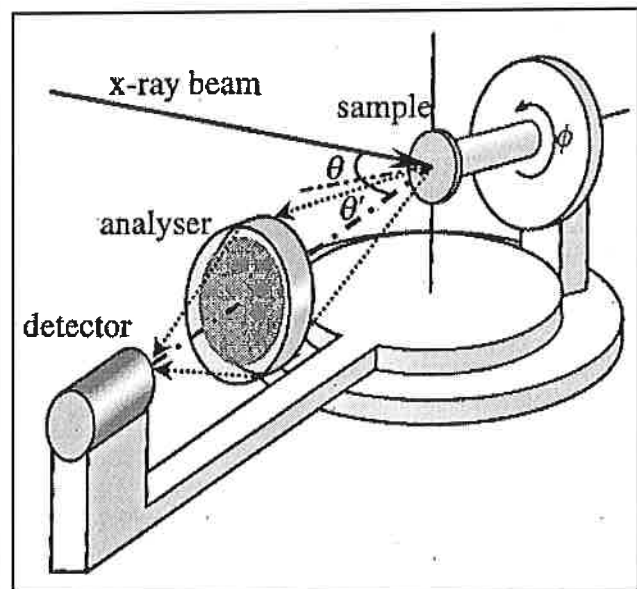
### A holografikus leképezés módszerfejlesztése

Természetesen a sikeres méréshez sok technikai problémát meg kellett oldani, amit most nem részletezünk [4]. A módszer működőképességének bizonyítása még nem vezet egyenest a gyakorlati életben való széles körű alkalmazáshoz. Ehhez még további számos problémát kell kiküszöbölni. Az elmúlt négy évben ezen dolgoztunk és napjainkra jutottunk el oda, hogy e technikával olyan kérdéseket válaszolhatunk meg, amely más módszerekkel nehezen elérhető. A következőkben csak nagy vonalakban említjük meg a fejlesztés legfontosabb lépéseit, s végül egy példát mutatunk az alkalmazásra.

Először a mérési időt csökkentettük. Az első mérés kb. 2 hónapot vett igénybe, jelenleg néhány perc alatt tudunk egy hologramot felvenni. Ezt a sugárforrás cseréjével – a hagyományos röntgengenerátorról szinkrotronra – és a mérőberendezés nagy intenzitásra való átépítésével értük el (3. ábra).



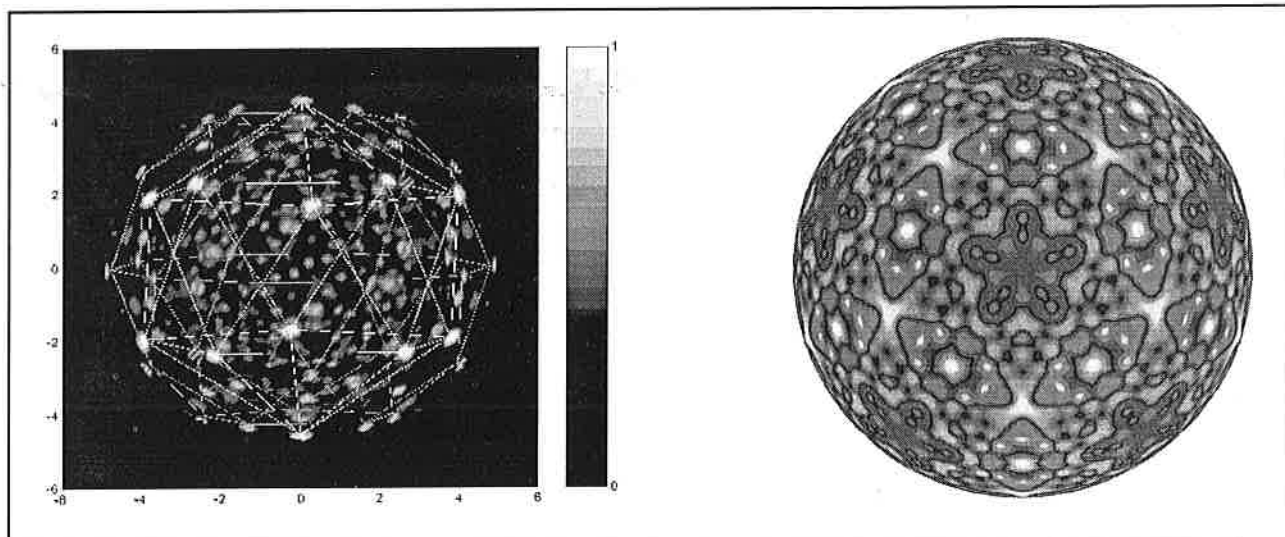
2. ábra. Egy SrTiO<sub>3</sub> kristályban a Sr atomot körülvevő többi Sr atom által létrehozott hologram (felül), és az ebből rekonstruált 3D atomi rend (alul)



3. ábra. Szinkrotron sugárforrásnál használt mérési elrendezés

Másodikként kifejlesztettünk egy olyan kiértékelést, amely az eredetileg erősen anizotrop valós térbeli felbontást megjavította és közel izotroppá tette. Erre mutat példát a címlapon, 4. ábra: CoO kristályban a Co atomok körüli környezet hologramja (felső kép), s az ebből rekonstruált atomi elrendeződés (alsó kép) [5].

Legutóbb pedig azon dolgoztunk, hogy a nehéz atomok mellett a könnyűeket is le tudjuk képezni. Sikerült egy NiO mintában a Ni atomokon kívül az oxigén atomok képét is megkapnunk [6]. Ezzel megnyílt a lehetőség szerves vegyületek vizsgálatára is.



5. ábra. AlPdMn kvázikristály Mn atomokon centrált hologramja (jobb oldalon), az ebből rekonstruált kép (bal oldalon)

Annak illusztrálására, hogy e módszer bizonyos esetekben túl lép az ismert szerkezet-meghatározó eljárásokon, egy kvázikristály holografikus leképezését mutatnánk be. A kvázikristályok olyan anyagok, amelyekben nincs hosszú távú periodikus rend, ugyanakkor mégsem teljesen rendezetlenek. Néhány jól meghatározott alakzattól teljes térkitöltéssel építhetők fel. Ez maga után vonja, hogy van bennük orientációs rend. A röntgendiffrakciós képük éles csúcsokból áll, de mégsem indexelhetők be az ismert 3D tércsoportoknak megfelelően, hanem csak valamilyen magasabb dimenziós periodikus rács segítségével. Így viszont a pontos 3D atomi elrendeződés (amit ilyen anyagoknál atomi dekorációknak szoktak nevezni) sem kapható meg hagyományos diffrakciós mérésekből. Mivel az általunk alkalmazott röntgen holográfia egy kiválasztott atom körüli 3D rendet adja meg, segítségével legalább az adott típusú atom körüli néhány környezet átlaga látható direkt módon. Egy AlPdMn kvázikristályban a Mn körüli atomok hologramját és az abból kapott 3D valós térbeli képet mutatja az (5. ábra) [7].

Végül e szakasz befejezéséeként meg kell említenünk egy tényezőt, amely jelenleg még igencsak leszűkíti a lehetséges alkalmazások területét: megbízható, jó minőségű hologram viszonylag nagy, síkfelületű mintáról készíthető. Ez nem egy elvi, hanem gyakorlati probléma, de jelenleg nem látunk egyszerű utat a megoldására.

### A röntgen holográfia alkalmazhatósága

Annak ellenére, hogy még jócskán van teendő a holográfia fejlesztésével kapcsolatban, érdemes néhány szót szólni a lehetséges alkalmazási területekről. A gyakorlat azt mutatja, hogy egy módszer alkalmazási területei akkor jelentkeznek igazán, amikor már viszonylag széles körben kezdik használni. Atomifeltöltésű holografikus méréseket ugyan a világon csak néhány laboratóriumban végeznek, ettől függetlenül a módszer néhány felhasználását már most is megjósolhatjuk. Ilyenek:

- hagyományos diffrakciós mérések kiértékelésénél segítséget nyújthat a fázisok rögzítésére, így meggyorsítva és biztosabbá téve a szerkezet-megoldást;
- alacsony koncentrációban jelenlévő szennyező atomok környezetének vizsgálata;
- felvezetőekben található adalékatomok körüli atomi rend meghatározása;
- biológiai molekulák aktív helyein ülő fématomok környezetének feltérképezése stb.

Ezek a problémák már megoldhatók a jelenleg rendelkezésre álló technikai eszközökkel.

Ha egy kicsit távolabbi jövőbe tekintünk, további érdekes alkalmazásokat láthatunk. Nagyon erős röntgenforrások és gyors detektorok használata, kombinálva gyors számítógépes adatfeldolgozással lehetővé teszi, hogy egy hologramot ms időskálán vegyünk fel, így valós időben követhetjük a lassú atomi mozgásokat. Egy további lehetőség, hogy az atomi fluoreszcencia helyett az atommagokból kibocsátott gammasugárzást használjuk mint „megvilágító” nyalábot. Ez olyan előnyökkel jár, mint kisebb forrásméret és ezáltal jobb térbeli felbontás, érzékenység az anyag belsejében kialakult mágneses és elektromos terekre. Ilyen típusú mérések közül az elsőt már el is végezték [8], de a valódi alkalmazások még hátra vannak.

Reméljük, hogy a fenti rövid áttekintéssel érzékeltettük, hogy a röntgen holográfia belépett az atomi szerkezetet vizsgáló módszerek közé. Azonban az is világos, hogy szélesebb körű felhasználásához még sok technikai és elméleti problémát meg kell oldanunk.

### Referenciák

1. D. Gabor: Nature (London) **161** 777-778 (1948).
2. A. Szöke: In Short Wavelength Coherent Radiation: Generation and Applications, ed. by D. T. Attwood and J. Boker: AIP Conference Proceedings No. **147** (American Institute of Physics, New York, N.Y.) 361-367 (1986).
3. M. Tegze and G. Faigel: Nature **380** 49 (1996)
4. G. Faigel, M. Tegze: Reports on Progress in Physics, **62**, (1999), 355-392
5. M. Tegze, G. Faigel, S. Marchesini, M. Belakhovsky, A.I. Chumakov: Phys. Rev.Lett. **82**, (1999), 4847-4851
6. M. Tegze, G. Faigel, S. Marchesini, M. Belakhovsky, O. Ulrich: Nature, **407**, (2000) 38.
7. S. Marchesini, F. Schmithüsen, M. Tegze, G. Faigel, Y. Calvayrac, M. Belakhovsky, J. Chevrier, A. S. Simionovici: Phys. Rev. Lett. **85**, 4723-4727, (2000)
8. P. Korecki, J. Korecki, T. Slezak: Phys. Rev. Lett. **79**, 3518, (1997)