

## Részletes szakmai zárójelentés

Kutatásaink az atomi szerkezet röntgensugárzással való vizsgálatát célozták. Napjainkban az ilyen típusú vizsgálatok a számos gyakorlati probléma mellett két lényeges elvi problémával küszködnek: az egyik, kis atomszámú nem-periodikus rendszerek szerkezete meghatározásának lehetősége, a másik pedig hogyan kerülhető meg a rugalmas szórás kép fázis információjának hiánya. Jelen otka pályázat keretében a fenti két probléma különböző részkérdéseivel foglalkoztunk. Ezek a kérdések két nagy területre sorolhatók:

1. A közeljövőben épülő lineáris gyorsítókon alapuló szabad elektron lézer típusú röntgenforrások (Free Electron Laser, FEL) segítségével hogyan határozhatjuk meg egyedi, kis, nem-periodikus rendszerek atomi szerkezetét;
2. A holografikus és rokon módszerek elméleteti és gyakorlati megvalósítása, különös tekintettel a fázisprobléma megoldására.

A következőkben a fenti két területen elért eredményeinket foglalom röviden össze.

A FEL sugárforrások a mai szinkrotron forrásoknál sokkal rövidebb (10-100 fs) impulzusokat és egy-egy impulzusban nagyságrendekkel több monoenergetikus (~5 eV sáv szélesség) fotont szolgáltatnak. E tulajdonságokra alapozva született meg az a javaslat, hogy a nyalábba helyezett kis minta drasztikus sugárkárosodását (a minta teljes szétrobbanása) úgy kerülhetjük meg, hogy egy szórás képet olyan rövid idő alatt vesszük fel, hogy ez alatt az idő alatt ne legyen idejük számottevően elmozdulni az atomoknak [1]. Ahhoz, hogy az atomok elmozdulását jól meg tudjuk becsülni, modelleznünk kell a minta viselkedését intenzív röntgen impulzusban. Munkánk első lépése egy ilyen modell kidolgozása volt [2]. Bár más kutatócsoportok is végeznek ilyen munkát, a mi leírásunk adja a legrészletesebb információt, mivel ez egy atomisztikus speciális molekuladinamika modell, szemben a mások által használt folytonos, hidrodinamikai modellekkel. Első számolásaink képet adtak szén atomokból álló atomfürtök Coulomb robbanásának részleteiről, az egyes folyamatok fontosságáról, az elektronok és ionok energia és térbeli eloszlásáról és a teljes rendszer időbeli fejlődéséről (a részletes eredményeket a [2] hivatkozás tartalmazza). Második lépésben modellünket továbbfejlesztettük más elemek leírására is. Általános tendenciaként azt kaptuk, hogy a nehezebb elemekből álló

részecskék gyorsabban, nagyobb energiájú termékeket produkálva robbannak [3]. A következő lépés a több elemet tartalmazó atomfürtök vizsgálata volt. Elsőként egy vízzén rendszert vizsgáltunk. Azért éppen ezt a rendszert vettük vizsgálat alá, mert az irodalomban megjelent egy olyan javaslat, hogy ha vízzel vesszük körül a mérendő részecskét akkor ez lassíthatja a robbanást és így több idő marad a szerkezet meghatározására. Azt találtuk, hogy kis atomfürtökre ez nem áll fenn [4]. Mivel a gyakorlatban nagyobb részecskék vizsgálatát tervezik, számításainkat kiterjesztjük ilyenek leírására is. Ez a munka jelenleg van folyamatban. A nehézséget a részecskemérettel igen gyorsan növekvő számítási igény okozza. Ezért jelentős számotógéppark és algoritmus-fejlesztést is kellett ez irányban végezni.

A fentiekben vázolt modellszámításokkal párhuzamosan és azokra támaszkodva kutatásokat folytattunk a részecskékről kapható rugalmasan szórt fotonok szórásképéből történő rekonstrukcióval kapcsolatban is. Megvizsgáltuk, hogy mely algoritmus a legalkalmasabb a rekonstrukcióra és azt, hogy milyen az a legnagyobb elmozdulás, amely mellett még atomi felbontással visszaállítható a részecske eredeti szerkezete [5]. Továbbfejlesztettük az un. „Fineup hybrid input-output” algoritmust [6] és ezt használtuk. Azt kaptuk, hogy a jelenleg tervezett és építés alatt álló FEL források impulzushossza túl nagy, ettől kb. egy nagyságrenddel rövidebb impulzusokra van szükség a sikeres rekonstrukcióhoz [5].

Az egyedi részecskék leképezésével kapcsolatosan egy kísérletet terveztünk: egy olyan rugalmas szórás-kísérletet, amely atomi szintű szerkezeti információt hordozó, folytonos szórás-képet ad. Ez egy jó kiinduló pontot jelentene arra vonatkozóan, hogy a valóságban milyen körülmények várhatók a tervezett egy részecske kísérletek esetén. Ehhez Szőke Ábrahám ötletéből indulunk ki [7]. Ennek lényege, hogy parciálisan koherens hullámokat használunk egy makroszkopikus minta atomjainak leképezésére. Ily módon korlátozva a koherensen szóró térfogatot, így tetszőleges mintaméretnek megfelelő szórási kép mérhetővé válik. Sajnos ezt a mérést nem tudtuk elvégezni, mert ehhez szinkrotron sugárforrás szükséges, és bár a beadott mérési javaslatunk jó osztályzatot kapott, a számunkra szükséges mérőállomás nagy leterheltsége miatt nem kaptunk mérési időt.

Végül az egyedi részecskék atomi szintű leképezésével kapcsolatos kutatásaink eredményeiből egy olyat említenék meg, amely nem szerepelt jelen pályázat tervei között. Megvizsgáltuk az ún. klasszifikációs problémát. Ennek megértéséhez a következőket kell figyelembe venni: a 3D atomi rend rekonstrukciójához a reciproktérben is egy 3D térfogatban kell meghatározni az intenzitást, mégpedig egy kocka alakú térfogatban. Azonban egy röntgenimpulzus alatt csak egy 2D képet tudunk felvenni. Vagyis nagyon sok ( $\sim 10^6$ ) ilyen 2D kép összeillesztésével kaphatjuk meg a szükséges 3D intenzitás-eloszlást. Azonban az egymást követő impulzusokba lőtt részecskék orientációja véletlenszerű, a kísérletező számára ismeretlen. A képek orientációját utólag a mért 2D képekből kell meghatározni. Ehhez először osztályokba kell rendezni a képeket, ahol egy-egy osztályba az azonos orientációval érkező részecskék képe kerül. Ezt a folyamatot nevezik klasszifikációnak. Megvizsgáltuk, hogy mi a klasszifikáció feltétele, az intenzitás, a részecskeméret és a robbanás dinamikájának függvényében. Bevezettünk egy a képekre vonatkozó új normalizációs feltételt, ami jelentősen javítja a klasszifikáció hatékonyságát [8].

A másik témakör, amellyel foglalkoztunk a holográfia és rokon módszerek fejlesztése. Ezen a területen már korábban is jelentős eredményeket értünk el. Jelenlegi célunk elsősorban a módszer alkalmazhatóságának kiterjesztése, és olyan variánsok kifejlesztése, amelyek segíthetik a korábbi pontban vázolt egyedi részecskék szerkezet-meghatározását. Korábbi eredményeinkre tekintettel, több összefoglaló jellegű cikk írására kértek fel. Ezekben a korábbi saját és mások által elért eredmények mellett, új eredményeket is közöltünk. A következőkben ezeket ismertetem. Holografikus méréseket végeztünk kolosszális mágneses ellenállást mutató  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  mintán. Azt vizsgáltuk, hogy egy fotoemissziós mérésekből feltételezett 470 K-nél történő átalakulás milyen jellegű. Más szerkezeti vizsgálatok erre nem adtak egyértelmű magyarázatot, egy Jahn Teller típusú torzulást javasoltak. Megmutattuk, hogy sztatikus torzulás nincs, azonban egy dinamikus torzulás összefér a jelenlegi mérési pontossággal [9].

Egy következő kísérletben a ThAsSe Kondo rendszert vizsgáltuk. Ennek az anyagnak az érdekessége, hogy 110 K alatt ferromágneses lesz, azonban fennmarad az ellenállás Kondo típusú viselkedése. A Kondo viselkedés nem mágneses eredetének magyarázatára

két nívós rendszert feltételeznek, amelynek legvalószínűbb eredete szerkezeti rendezetlenség, legvalószínűbben betöltési rendezetlenség. Ennek a feltételezésnek a vizsgálatát tűztük ki célul. Azt találtuk, hogy a As/Se betöltési rendezetlenség nem nagyobb mint 10% , azonban a Se atomoknak megjelenik egy a kristályszerkezetben nem létező pozíciója is, ami alapja lehet a kétnívós rendszer kialakulásának [10].

Az alkalmazások mellett javasoltunk egy a holográfiával rokon módszert, amit szögintegrált rugalmas szórásnak nevezünk. Kísérletileg is bizonyítottuk a módszer működőképességét [11]. E módszer eredményeképpen a röntgenhologramhoz hasonló képet kapunk. Azonban ez a kép nem tartalmazza a fázisinformációt úgy, mint a hologram, így ebből csak az ún. Patterson térképhez hasonló információ kapható meg direkt módon. Azonban a minta egy elemének abszorpciós éle alatt és fölött mérve már megkaphatjuk az adott elem körüli 3D atomi elrendeződést, a holográfiához hasonlóan. E méréstípus előnye, hogy nem kell hozzá nehéz elemnek lenni a mintában, és viszonylag rossz kristály is használható a méréshez. E méréssel kapcsolatosan egy további munkánkban megmutattuk, hogy ebből meghatározhatók a szerkezeti tényezők anélkül, hogy feltételeznénk egy rácsot, mint hagyományos diffrakciós méréseknél [12]. E mérés elvileg alkalmazható a korábban tárgyalt kis egyedi részecskék vizsgálatára is. A részletek kidolgozására még további kutatások szükségesek.

Végül meg kell említeni a hagyományos röntgentechnikákkal elért eredményeinket. Por- és egykristály-diffrakcióval vizsgáltuk egy új anyagcsalád a kubán és fullerén molekulák alkotta mintákat. Meghatároztuk ezek szerkezetét, és széles hőmérséklettartományban vizsgáltuk a kialakuló fázisokat [13].

### **Hivatkozások**

- [1] R. Neutze, R. Woults, R. van der Spoel, E. Weckert, J. Hajdu, Nature, 406, (2000), 752-757.
- [2] Zoltan Jurek, Gyula Faigel, and Miklos Tegze, European Physical Journal D **29**, 217-229 (2004)
- [3] G. Faigel, Z. Jurek, G. Oszlanyi, M. Tegze, Journal of alloys and compounds **401**,86-91,(2005)

- [4] Zoltan Jurek, Imaging of atom clusters by hard x-ray free electron laser pulses, XX. Congress of IUCr, 2005 Florence, Italy, szóbeli előadás
- [5] Z. Jurek, G. Oszlanyi and G. Faigel, Europhysics Letters, **65**, 491-497, (2004)
- [6]. J.R. Fineup, Opt. Lett. **3**, (1978), 27.
- [7]. A.Szőke, Acta Cryst. **A57**, (2001), 586
- [8] G. Bortel, G. Faigel, Classification of continuous diffraction patterns: a numerical study, *J. Struct. Biol.*, elfogadva, nyomdában.
- [9] G. Faigel, G. Bortel, C. Fadley, A. S. Simionovici, M.Tegze, Ten years of x-ray holography, *X-ray Spectrometry*, elfogadva, nyomdában.
- [10] G. Faigel, G. Bortel and M.Tegze, Hard x-ray holographic methods, *Nato Proc. Series*, elfogadva, nyomdában.
- [11] G. Faigel, M. Tegze, G. Bortel, L. Koszegi, *Europhys. Lett.* **6**, 1201, (2003)
- [12] Gabor Bortel, Miklos Tegze and Gyula Faigel, *J. Appl. Cryst.*; **38**, 780-786, (2005)
- [13] Sándor Pekker<sup>\*</sup>, Éva Kováts<sup>\*</sup>, Gábor Oszlányi<sup>\*</sup>, Gyula Bényei<sup>+</sup>, Gyöngyi Klupp<sup>\*</sup>, Gábor Bortel<sup>\*</sup>, István Jalsovszky<sup>+</sup>, Emma Jakab<sup>++</sup>, Ferenc Borondics<sup>\*</sup>, Katalin Kamarás<sup>\*</sup>, Mónika Bokor<sup>\*</sup>, György Kriza<sup>\*</sup>, Kálmán Tompa<sup>\*</sup> and Gyula Faigel<sup>\*</sup>, *Nature Materials*; **4**, 764-767, (2005)