

A. Bevezetés

A fő feladat kollektív jelenségeket mutató szilárd testek vizsgálata volt multifrekvenciás elektron spin rezonancia módszerrel. Az OTKA pályázat 3 és fél éve alatt az eredeti munkatervet – kis eltérésekkel – teljesítettük. A tudományos tervhez képest hangsúlyeltolódást jelentett, hogy a tervezetthez képest kevesebbet foglalkoztunk mangánit perovszkitok töltés és mágnesesen rendezett állapotaival, ezzel szemben nagyobb súlyt kapott előre nem tervezett anyagok és rendszerek kutatása, mint a nikkellát perovszkitok, ultravékony ferromágnesek és a szerves szupravezetők. A pályázati periódusban számos fejlesztést hajtottunk végre és kiemelt jelentőségű, hogy új, tágasabb laboratóriumba költöztünk. Az elért eredményeket számos közleményben illetve konferencia előadáson ismertettük. A munka tervezetőségét nagymértékben akadályozta a kaotikus finanszírozás és az ezzel párosuló bürokratikus elszámolási rendszer.

B. Tudományos program

A kutatási program a multifrekvenciás elektron spin rezonancia spektroszkópiai vizsgálatok módszerével végzett kísérleteket célozta három témacsoportban:

1. Szupravezető és ezekkel rokon mágnesesen rendezett anyagok
2. Perovszkitok mágnesesen rendezett és töltésrendezett állapotai
3. Elektron delokalizáció fullerén és más szénelapú nanoszerkezetekben.

1./ Szupravezetők és rokon mágnesesen rendezett anyagok

1.1. Kis koncentrációjú elektronlyuk dópolt kuprátok

A ma már “klasszikusnak” számító CuO_2 alapú kuprát vezetőkben munkánk az antiferromágnesség és szupravezető állapot határán lévő rendszerekre irányult. Részletesen vizsgáltuk a Gd^{3+} ESR próbával és a lyukkonzentrációt Ca-mal változtatott $\text{Gd:Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ rendszer mágneses szerkezetét az x lyukkonzentráció, a mágneses tér és a hőmérséklet függvényében. Az antiferromágneses doménszerkezet fázisdiagramját feltérképeztük. Tanulmányoztuk a sokat vitatott elektronikus fázisszeparáció kérdését. Az ESR mérésekből arra a következtetésre jutottunk, hogy a fázisszeparációból eredő töltésinhomogenitás nem egydimenziós csík (“stripe”) jellegű, hanem inkább négyzetrács-szerű. A Brookhaven-i National Light Source laboratóriumában végzett méréseink megmutatták, hogy bár mágneses térrel az antiferromágneses doménszerkezet megszüntethető, de a töltésinhomogenitásra nincs számottevő hatása. A vizsgálatokról számos előadást tartottunk, 2006. májusában egy hosszabb, összegző tanulmányt nyújtottunk be a Physical Review B folyóiratnak.

1.2. MgB_2 szupravezető vezetési elektron spin rezonancia vizsgálata

A 2001. év elején fedezték fel japán kutatók [6], hogy a MgB_2 $T_c = 40\text{K}$ alatt szupravezető. Az anyag különlegessége: egyszerű kristályos szerkezete és érdekes elektronszerkezete. Fermi felülete közel kétdimenziós és háromdimenziós részekből áll, amelyek - a feltételezések szerint - a nagytisztaságú anyagban két, közel független, szupravezető energia-gap-et hoznak létre T_c alatt. A MgB_2 elektronszerkezetét egyre pontosabb kísérletek és számítások írják le, a szupravezetés fő jellemzőit azonban még nem sikerült megérteni. Rejtélyes jelenleg a szupravezető második kritikus tér, H_{c2} nagy értéke és az általunk először felismert nagy H_{c2} [7] anizotrópia. A megfigyelések szerint alapállapotban egy $l = 0$ s-hullámú szupravezető gap van, amelyet azonban a H_{c2} -höz képest kis mágneses terek, és a T_c -hez képest kis hőmérsékletek a vártnál jóval erősebben befolyásolnak. Az így szerzett tapasztalatok tették lehetővé az eredményes kísérleteket a MgB_2 rendszeren.

Megnéztük a MgB_2 szupravezető állapotában a spinszuszeptibilitást és a spin-rács relaxációt széles hőmérséklet és mágneses tér tartományban vezetési elektron spin rezonancia módszerrel. A mérések igazolták a meglepően erős mágneses tér függést, de az általánosan elfogadott modellel nem értelmezhetők. A vizsgálatokhoz alacsony frekvenciás mérőfejeket fejlesztettünk ki. A spindinamikai vizsgálatokat longitudinális detektálású ESR spektroszkópiával végeztük.

2. Perovszkitok mágnesesen rendezett és töltésrendezett állapotai

Az eredeti kutatási tervben mangánit perovszitok vizsgálatát tűztük ki. A korábban megkezdett kutatásokat a mangánitokon három közlemény megjelentetésével 2003-ban lezártuk. Itt a fő megválaszolandó kérdés a töltésszeparáció kimutatása volt különböző rendszerekben. A Grenoble-i Nagy Mágneses Terek Laboratóriumával és a Stony Brook-i Egyetemmel végzett együttműködést ezután a NaNiO_2 perovszkit rendszerrel folytattuk. Ez a rendszer egy kétdimenziós háromszög rácsot alkot $s=1/2$ -s spinekkel. A háromszög rács frusztrációja ellenére 20K alatt antiferromágneses. A rezonancia módus görbéket feltérképeztük és értelmeztük. A munka a vártnál nehezebbnek bizonyult, az eredmények összefoglalójáról készült közleményt 2006. nyarán nyújtjuk be.

3. Elektron delokalizáció fullerén és más szénelapú nanoszerkezetekben

3.1. Elektron dópolt fullerén: $C_{59}\text{N}:C_{60}$

Az elektromosan vezető fullerének az elmúlt évtizedben számos meglepetéssel szolgáltak. Először a magas átmeneti hőmérsékletű alkáli fullerid szupravezetők keltettek nagy feltűnést. Néhány évvel később a vezető lineáris fullerid polimerek kerültek az érdeklődés középpontjába. A pályázatban alacsony elektron dópolású rendszereket kívánunk vizsgálni. Kevés olyan félvezető fullerén ismert, amelyekben az elektron dópolást kis koncentrációban adalékolt molekulák vagy atomok adják. A részletesen vizsgált alkáli fulleridek jól meghatározott összetételűek, a feladatra nem alkalmasak. A téma szempontjából érdekesnek tartjuk a $C_{59}\text{N}$ -nel dópolt C_{60} rendszert, amelyről először 2001-ben számoltunk be [11]. A $C_{59}\text{N}:C_{60}$ rendszert laboratóriumunkban gázkisülési csőben állítjuk elő. Az így kapott anyag szublimációval nagymértékben tisztítható. Vizsgálataink szerint a $C_{59}\text{N}:C_{60}$ különleges elektromos és mágneses tulajdonságokkal rendelkezik. A $C_{59}\text{N}$ a C_{60} -hoz képest egy többletelektronnal rendelkezik, ami a semleges molekulát mágnesessé teszi. Ez a semleges állapot azonban - különböző okból - nem

stabil sem alacsony, sem magas hőmérsékleteken. Alacsony hőmérsékleten a $C_{59}N$ reagál a környezetében lévő C_{60} molekulákkal és $C_{59}N - C_{60}$ dimert akot, magas hőmérsékleten a többletelektron delokalizálódik a C_{60} rácsban és $C_{59}N^+$ elektromosan töltött, nem mágneses ion marad hátra. Szobahőmérsékleten fluktuáció lép fel: az idő 15%-ban $C_{59}N - C_{60}$ heterodimer, 85 %-ban semleges $C_{59}N$ állapotban van a rendszer. A szerkezeti fluktuáció együtt jár a forgásállapotok drasztikus változásával. Eredményeinket neves tudományos folyóiratban közöltük.

3.2. Nanoszegregáció Na_2C_{60} fullerid sókban

Az MTA-SzFKI kutatóival együttműködve vizsgáltuk a Na_2C_{60} rendszert. Számos, sok tekintetben ellentmondó eredmény jelent meg erről a rendszerről, amelynek fontosságát a C_{60}^{2-} ionnak várhatóan különleges Jahn-Teller torzult alapállapota adja. A magas hőmérsékletű infravörös és ESR mérések 500K körül ezt a várakozást igazolják. Szobahőmérsékleten és alacsonyabb hőmérsékleten azonban a rendszer szerkezete inhomogénné válik a Na atomok szegregációja következtében. Eredményeink feloldják az irodalomban található ellentmondásokat. A munkát részletező közleményt 2006 júliusában közlésre benyújtjuk.

3.3. Spinjelzett fullerének töltött szénalapú nanocsövekben

A N atomot magába foglaló C_{60} fullerén ($N@C_{60}$) és a $C_{59}N$ szabadgyök részletes ESR vizsgálata laboratóriumunkban felvetette, hogy a szén alapú nanocsövek elektromos szerkezetére jellemző információt kaphatunk, ha ezeket a spin jelzett fulleréneket nanocsövekbe töltjük. A munkát Simon Ferenc vezette, aki 2005. november 1-ig a Bécsi Egyetem kutatója volt, azóta pedig a BME Mágneses laboratórium kutatója. A $N@C_{60}$ -nal töltött szén nanocsöveket sikerült előállítani és ESR spektrumát értelmezni. A $C_{59}N$ -nel töltött nanocsövek vizsgálata elkezdődött.

4. Ferromágneses - paramágneses rétegszerkezetek

4.1 Ferromágneses relaxáció Fe_4V_4 ultravékony rétegekben

A Freie Universität Berlin Prof. Klaus Babeschke vezette csoportjával együttműködésben elektron spin rezonancia kísérleteket végeztünk ultravékony 4 atom réteg Fe, 4 atomréteg V multiréteg szendvicseken a ferromágneses relaxáció értelmezésére. A probléma mind elméleti, mind gyakorlati szempontból fontos, hiszen a relaxáció a ferromágneseken alapuló memóriák sebességét határozza meg. Megmutattuk, hogy a széles frekvenciatartományban végzett méréseket két mechanizmussal lehet leírni: az ún. Landau vagy Gilbert fékezéssel, illetve a spinhullámok szórásával. Az eredményeket a Physical Review B folyóiratban közöltük.

C./ Laboratórium és műszerpark fejlesztés

ESR spektrométer

Az 1995-ben a Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem Fizikai Intézetében létesített mágneses rezonancia laboratóriumot folyamatosan fejlesztettük, elavult egységeit kicseréltük. Az elérhető frekvencia- és hőmérséklettartományokat szélesítettük. A berendezéssel méréseket

végeztünk 0 – 9T mágneses térben számos frekvencián 3.8 GHz és 225 GHz között, 2.5 K és 520 K hőmérséklettartományban. Felújítottuk a spektrométer számítógépes vezérlését.

Új, 75 GHz-es mikrohullámú hidat építettünk, amely a korábbinál jobban kontrollált, stabilabb működést tesz lehetővé. A berendezéseket a lehűtött szupravezető mágnessel, 2003-ban és 2004-ben 9-9 hónapig, 2005-ben (a labor költözése miatt) 6 hónapig, míg 2006 első félévében 5 hónapig működtettük. A 2003-ban elkészült “longitudinális detektálású” ESR spektrométert dinamikus mérésekre, a MgB_2 szupravezetők spin-rács relaxációs idejének mérésére alkalmaztuk.

Új laboratóriumi helyiségek

2005 folyamán az előzőnél kétszer nagyobb felújított infrastruktúrájú laboratóriumi helyiségbe költöztettük a multifrekvenciás spektrométert, átköltözött, de nem újult meg a mintaelőkészítő laboratórium és a mechanikai műhely. A költöztetés és laborfelújítás költségeit, körülbelül 3 millió Ft-ot, nagyobb részt a BME, kisebb részben az MTA-egyetemi kutatócsoport támogatása fedezte. Az új laboratórium lehetővé teszi a mm-hullámú kvázi-optikai híd alkalmazását, amelyet az elkövetkező évekre tervezzük. A híd lényeges érzékenység növekedést fog eredményezni.

Szerves kristályok elektrolitos növesztése

A szerves szupravezetők és mágneses rendszerek tanulmányozásának előfeltétele, hogy saját laboratóriumunkban jó minőségű egykristályokat növezzünk. 2005 folyamán a Csernogolovkai Kutató Intézet (Oroszország) és a Lausanne-I EPFL tapasztalataira támaszkodva új elektrolitikus kristálynövesztő berendezést létesítettünk. Az első szerves szupravezető és ferromágneses rendszereket ($K-Cu(BEDT-TTF)_2NCS$ és $MnCr(C_2O_4)_3-BEDT-TTF$) 2006 folyamán sikerrel növesztettük. Ezt a munkát a közeljövőben intenzíven kívánjuk folytatni.

D./ Hazai és nemzetközi kapcsolatok

Szoros együttműködésben dolgoztunk az MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutató Intézete és az MTA Központi Kémiai Kutató Intézet kutatóival, elsősorban a fullerének és fullerén származékok vizsgálatánál. Az MTA Központi Kémiai Kutató Intézetben felállított Bruker Elyxsys ESR komoly segítséget jelentett az alacsony mágneses térben nagy felbontást kívánó munkáknál.

Közös kutatást végeztünk a Lausanne-i Ecole Polytechnique Federale (Svájc) Physics of Complex Materials Intézetével, ahol egy nagyérzékenységű, a budapesti spektrométernél nagyobb mágneses tereket elérő (16T) spektrométert állítottak üzembe 2005 folyamán. A Lausanne-I nagyfrekvenciás ESR laboratórium létesítésében szerepet játszott sok éves együttműködésünk és a BME laboratóriumunkban képzett fiatal kutatók (Fehér Titusz, Náfrádi Bálint) szakértelme.

Az együttműködés a garchingi Walter Meissner Intézettel (WMI) tette lehetővé a kuprát szupravezetők vizsgálatát. A WMI-ben növesztett kiváló minőségű egykristályokon a Budapesten végzett ESR spektroszkópiái, a WMI-ben végzett Raman spektroszkópiái és a Stony Brook-i egyetemmel kooperációban a Brookhaven-i National Light Source-nál végzett távoli infra transzmissziós mérések együttese járult hozzá számos vitatott kérdés tisztázásához.

A Bécsi egyetemmel való együttműködést a BME Mágneses Rezonancia Laboratóriumában PhD-t szerzett Simon Ferenc posztdoktori munkájára alapoztuk. A szén nanocsövek előállítását,

Raman spektroszkópiai és elektron diffrakciós vizsgálatát Bécsben, az ESR vizsgálatokat Budapesten végeztük.

Megszerveztük a nagyfrekvenciás ESR spektroszkópia SENTINEL Európai Hálózatának zárókonferenciáját Budapesten “Electron Paramagnetic Resonance at High Field and High Frequency: Technology and Application, 2005” címmel, 2005. május 11-13. között.