DE TTK



1949

Molekulák ionbombázással kiváltott ionizációja és szétesése

Egyetemi doktori (PhD) értekezés

Kovács Sándor

Témavezető: Dr. Sulik Béla

DEBRECENI EGYETEM Természettudományi Doktori Tanács Fizikai Tudományok Doktori Iskolája Debrecen, 2017.

Készült

a Debreceni Egyetem Fizikai Tudományok Doktori Iskolájának Atom- és molekulafizika programja keretében a Magyar Tudományos Akadémia Atommagkutató Intézetben (MTA Atomki) Ezen értekezést a Debreceni Egyetem Természettudományi Doktori Tanács Fizikai Tudományok Doktori Iskolájának Atom- és molekulafizika programja keretében készítettem a Debreceni Egyetem természettudományi doktori (PhD) fokozatának elnyerése céljából.

Nyilatkozom arról, hogy a tézisekben leírt eredmények nem képezik más PhD disszertáció részét.

Debrecen, 2017.

Kovács Sándor jelölt

Tanúsítom, hogy Kovács Sándor doktorjelölt 2011- 2017 között a fent megnevezett Doktori Iskola Atom- és molekulafizikai programjának keretében irányításommal végezte munkáját. Az értekezésben foglalt eredményekhez a jelölt önálló alkotó tevékenységével meghatározóan hozzájárult. Nyilatkozom továbbá arról, hogy a tézisekben leírt eredmények nem képezik más PhD disszertáció részét. Az értekezés elfogadását javasolom.

Debrecen, 2017.

Sulik Béla témavezető

Molekulák ionbombázással kiváltott ionizációja és szétesése

Értekezés a doktori (Ph.D.) fokozat megszerzése érdekében a fizika tudományágban

Írta: Kovács Sándor okleveles Környezetkutató fizikus

Készült a Debreceni Egyetem Fizikai Tudományok Doktori Iskolája Atom és molekulafizika programja keretében

Témavezető: Dr. Sulik Béla

A doktori szigorlati bize	ottság:	
elnök:	Dr	
tagok:	Dr	
	Dr	
A doktori szigorlat időp	ontja: 201	
Az értekezés bírálói:		
	Dr	
	Dr	
A bírálóbizottság:		
elnök:	Dr	
tagok:	Dr	
	Dr	••••••
	Dr	
	Dr	

Az értekezés védésének időpontja: 201.

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés és célkitűzések	1
2. Irodalmi áttekintés	4
2.1 Atomok	4
2.2 Molekulák	5
2.2.1 Kotesi mechanizmusok, molekulapalyak, molekulak elektronallapotai	5
2.2.2 Az általunk vizsgált három molekula fontosabb tulajdonságai	9
2.3 Atomi és molekuláris ütközésekben lejátszódó alapvető folyamatok	10
2.3.1 Gerjesztés, ionizáció, többszörös ionizáció	11
2.3.2 Relaxációs folyamatok	13
2.3.3 Elektronemissziós mechanizmusok ion-molekula ütközésekben	15
2.3.4 A kétszeresen differenciális elektronemissziós spektrum	20
2.3.5 Elektronbefogás, elektronvesztés és transzfer ionizáció	21
2.3.6 Molekulák szétesése	21
2.3.7 A Coulomb-robbanásból származó kation fragmentumok energia- és szögelos	szlása24
2.3.8 Negatív töltésű fragmentumok keletkezése molekuláris ütközésekben	28
2.3.9 Atomi és molekuláris ütközések bonyolultabb rendszerekben	29
2.4 Ütközések elméleti leírása	32
2.4.1 A klasszikus pályájú Monte-Carlo módszer (CTMC)	32
2.4.2 Félklasszikus közelítés (SCA)	34
2.4.3 Síkhullámú Born-közelítés (PWBA)	35
2.4.4 Magasabbrendű folyamatokat részben tartalmazó kvantummechanikai módsz	erek36
2.4.5 Többszörös Coulomb-ionizáció	38
2.4.6 Árnyékolt Coulomb potenciál	38
2.4.7 A molekula fragmentáció elméleti leírásának alapjai	40
3. Kísérleti berendezések és módszerek	42
3.1 Gerjesztő források	42
3.1.1 Az Atomki 5 MV-os Van de Graaff részecskegyorsítója	42
3.1.2 ECRIS a GANIL intézetben	43
3.2 Spektrométerek	45
3.2.1 Az Atomkiban kifejlesztett párhuzamos lemezpár spektrométer	46
3.2.2 Spektrométer a GANIL intézetben	48
3.3 Mérési elrendezések és módszerek	49
4. Saját eredmények	54
4.1 Mérőrendszer: széles nyomástartományban működő gáz céltárgy rendszer kifejle	sztése54
4.1.1 A céltárgy részecskesűrűségének meghatározása	56

4.2 Differenciális abszolút hatáskeresztmetszetek meghatározása	63	
4.3 Kis molekulák ionbombázással kiváltott ionizációjának vizsgálata		
4.3.1 A mért spektrumok általános jellemzői		
4.3.2 Elektronemissziós hatáskeresztmetszetek kísérleti meghatározása	69	
4.3.3 A Wilson és Toburen által bevezetett skálázási szabály kiterjesztése	72	
4.3.4 Az elektronemisszió vizsgálata CTMC és CDW-EIS számolások	eredményein	
keresztül	73	
4.4 Molekulák fragmentációja	82	
4.4.1 A fragmentációs spektrumok általános jellemzése	82	
4.4.2 Kis molekulák ionbombázással kiváltott fragmentációjának vizsgálata	85	
4.4.3 A vízmolekula többszörös ionizációjának vizsgálata	90	
4.5 Negatív hidrogén-ion fragmentumok keletkezése molekuláris ütközésekben		
5. Összefoglalás	104	
6. Summary	108	
7. Köszönetnyilvánítás	112	
8. Irodalomjegyzék	113	
Az értekezés témakörében megjelent közlemények	119	

1. Bevezetés és célkitűzések

A makroszkopikus anyag, és ezen keresztül az anyagi világ tulajdonságai az őket felépítő részecskék tulajdonságaira, illetve kölcsönhatásaikra vezethetők vissza. Akár az anyagot felépítő mikroszkopikus rendszereknek állapotait, akár környezettel való kölcsönhatásukat vizsgáljuk, szükség van az adott mikroszkopikus rendszer egyensúlyi helyzetből való kibillentésére, megzavarására. A megzavarás (perturbáció) erősségétől függően egyre mélyebbre tekinthetünk az anyagban. Gyenge ráhatásokkal (pl. termikus gerjesztések) az atomok és molekulák statisztikus viselkedése vizsgálható. Nagyobb kölcsönhatási energiák esetén a molekulák belső szerkezete és az atomok elektronszerkezete is tanulmányozhatóvá válik. Nagyon erős perturbációkkal az atommagot, még erősebbekkel pedig az elemi részecskéket vizsgálhatjuk.

Az atomfizika a fenti szemlélet szerint közepesen és erősen megzavart atomok és molekulák szerkezetének, és kölcsönhatásainak tanulmányozásával foglalkozik. A megismerésre irányuló atomfizikai kutatások jelentős részében arra törekszünk, hogy egy kiválasztott folyamatot vizsgáljunk, a többitől jól elkülönítve. Ilyen a foton elnyelődésével kiváltott gerjesztési, ionizációs, disszociációs küszöbenergiák mérése, vagy a röntgen indukált Auger-elektron spektroszkópia. A foton energiája jól meghatározott, és megfelelő fotonforrás esetén finoman hangolható, a céltárgy pedig egy hozzá képest térben kiterjedt elektromágneses térrel hat kölcsön. Így az adott folyamat energetikailag jól behatárolt, de a gerjesztő forrás (foton) térben gyakorlatilag nem lokalizálható. Ezzel szemben a nagy energiás ion-atom és ion-molekula ütközésekben a kölcsönhatások térben lokalizáltak, az energiaátadás viszont széles energiatartományban mozoghat. Ezeknek a vizsgálatoknak jellemzője, hogy az atomokban és molekulákban lejátszódó folyamatokat azok küszöbenergiájától egészen nagy energiákig, egyszerre vizsgálhatjuk. Az ilyen ütközésekben igen összetett spektrumokat kaphatunk, ami hátrányt (bonyolultság), és előnyt (teljes eloszlások szimultán megmérése) is jelenthet a folyamatok megértése szempontjából.

Az alapkutatásokat három csoportba sorolhatjuk. Az elsőbe az eddig még ismeretlen területen, a felfedezés szándékával történő, újszerű vizsgálódások tartoznak. A második az "ismert ismeretlennek" a vizsgálata, mely általában elfogadott elméletek által megjósolt, de eddig meg nem figyelt jelenségek után kutat. A harmadik csoportba a már ismert jelenségek további, behatóbb tanulmányozása tartozik. Az ebbe a csoportba eső kutatásokat motiválhatják gyakorlati igények, vagy a részletesebb megismerésre

törekvés. Utóbbi elvezethet a természetben elő nem forduló, de kísérleti körülmények között létrehozható folyamatok megismeréséhez is.

Az atomi ütközések fizikája a harmadik csoportba sorolható. Jelen munka fő célja a nehéz részecske-molekula ütközésekben lejátszódó két folyamat, az elektronemisszió, és molekula szétesés tanulmányozása. Dolgozatommal bővíteni szeretném továbbá a terület amúgy igen gyér magyar nyelvű szakirodalmát is. Az atomi ütközések gyorsítókkal történő vizsgálata csaknem 60 évre tekint vissza. A detektálási nehézségeket megoldva, Blauth (1957) [1] valamint Moe és Petsch (1958) [2] voltak az elsők, akik mérték az ion-atom ütközésekből származó elektronemissziót. Azóta, a gyorsítók, analizátorok és detektortechnika fejlődésének köszönhetően, számos lövedék-céltárgy kombinációban vizsgálták atomok és molekulák ütközéseit [3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10]. Számos kutatási irány alakult ki, melyek egy részét az alkalmazási lehetőségek motiválták, és hajtják előre ma is. Ilven irányok például a szilárd testek ionokkal történő besugárzásával létrehozott ionimplantáció, sugárzásálló anyagok kifejlesztése az űrkutatás számára, és a biológia szempontjából fontos nagy biomolekulákon, vagy élő szervezeteken végzett ionbesugárzásos kísérletek, melyek a modern sugárterápia alapját képezik. Ez utóbbi terület engem személy szerint különösen érdekel, ezért a szakirodalom áttekintése fejezetben ezt a témakört bővebben is tárgyalom. Egy másik kutatási irányban – melybe jelen munka is tartozik – a folyamatok pontos megértését célozzuk meg, ezért a kutatómunka jelenlegi fázisában a kicsi, néhány atomból álló célmolekulákat tanulmányozzuk. Az így felhalmozott ismeretanyag a fizika más területein is fontos. Tanulmányozhatók így a csillagközi gáz és porfelhőkben lejátszódó ütközési folyamatok, de így vizsgálható ütközések zajlanak bolygónk felső légkörében, melynek atomjait, molekuláit folyamatosan bombázzák az űrből érkező töltött részecskék. Atomi ütközések játszódnak le a csillagokban, valamint a különféle plazmákban is, melyeket az ütközések okozta gerjesztések, ionizációk, és az ezzel ellentétesen ható rekombinációs folyamatok egyensúlya tart fenn.

Az ütközésekben bekövetkező átrendeződési folyamatokról, valamint az ütköző partnerek szerkezetéről a kilépő töltött részecskék detektálásával, spektroszkópiájával nyerhetünk információt. Részletesen tanulmányozhatjuk a céltárgyat, és magának az ütközésnek a dinamikáját, az elektronok energiájának és szögeloszlásának egyidejű mérésével. Az Atomkiban erre a célra több, nagy energia- és szögfeloldással rendelkező elektrosztatikus elektronspektrométert is kifejlesztettek az elmúlt évtizedekben (ESA-21, ESA-22). Ezek feloldása és pontossága olyan jó, hogy a spektrumban megjelenő, magasabb rendű folyamatokat is tanulmányozni tudták (ütközés utáni kölcsönhatások, Fermi gyorsítás).

Az ütközéses fizikában a kezdetektől tanulmányozzák a molekuláris ütközéseket is. Az atomi ütközésekhez képest ezek jóval bonyolultabbak. A leglényegesebb különbség, hogy az atomi ütközésekben lejátszódó folyamatok repertoárja kibővül, a molekulák ütközés következtében történő feldarabolódásával (fragmentációjával). Ezért, itt már nem csak az elektronemissziót és a meglökött céltárgy iont vizsgálhatjuk, hanem a kirepülő atomi- és molekulaion töredékek fajtáit, töltésüket, valamint energia és szögeloszlásukat is. A molekulák ütközésbeli feldarabolódásáért több primer mechanizmus tehető felelőssé, úgymint gerjesztés, disszociatív elektron befogás, Coulomb-ionizáció, vagy direkt kéttest ütközés, melyek kellően differenciális mérésekben azonosíthatók is. A kétszeresen vagy többszörösen ionizált molekulák fragmentációját az ún. Coulomb-robbanás mechanizmusával írhatjuk le.

Dolgozatomban a molekulák ionizációja során emittált elektronok, valamint az ezt követő fragmentáció során kirepülő ion töredékek energia és szögeloszlásának vizsgálatában elért eredményeimet ismertetem. Mérésinket egy, az Atomkiban speciálisan erre a célra kifejlesztett új mérőrendszerrel végeztük. Egy fúvókán keresztül a mérőkamrába bevezetett gőz és gáznyalábokat (vízgőz, metán és nitrogén) bombáztuk a VdG-5 gyorsítóból érkező ionnyalábbal. Lövedékként MeV energiájú H⁺, He^+ és N^+ ionokat használtunk. Egy általunk kifejlesztett energia-diszperzív elektrosztatikus spektrométerrel mértük az ütközésből származó töltött részecskék szögeloszlását, melvekből kétszeresen differenciális energia és abszolút hatáskeresztmetszeteket határoztunk meg. Megvizsgáltam a fragmentációs és elektronemissziós hatáskeresztmetszeteknek a lövedék-paraméterektől való függését. A mért hatáskeresztmetszeteket CDW-EIS és CTMC számolások eredményeivel hasonlítottam össze. Mindhárom lövedék esetén meghatároztam a kapott fragmentációs spektrumokból a céltárgy többszörös ionizációjának hatáskeresztmetszeteit. Francia együttműködésben, hasonló, de alacsonyabb bombázó ionenergia tartományban végzett méréseinkben negatív töltésű ion-fragmentumok keletkezését is vizsgáltuk.

Dolgozatom felépítése a következő: A második fejezetben áttekintem az atomi és molekuláris ütközésekben lejátszódó főbb folyamatokat, az azokat tárgyaló irodalmat, valamint az ütközési folyamatok leírására szolgáló főbb elméleti módszereket. A harmadik fejezet tartalmazza mérőrendszereink részletes leírását. Az Atomkiban használt kísérleti együttes mellett röviden ismertetem a Franciaországban, a GANIL intézetben használt mérési elrendezést is. A negyedik fejezetben saját eredményeimet ismertetem, kezdve az általam kifejlesztett gáz céltárgy rendszer bemutatásával. Külön alfejezetekben tárgyalom az ionizációs, és molekula fragmentációs méréseket, és azok eredményeit. A dolgozat tartalmi részét magyar és angol nyelvű összefoglaló zárja.

2. Irodalmi áttekintés

Ebben a fejezetben áttekintem az atomok és molekulák leírásához kapcsolódó, a dolgozatban előforduló jelöléseket, a molekulák legfontosabb tulajdonságait, valamint az ion-atom és ion-molekula ütközésekben lejátszódó alapvető folyamatokat. Kiemelt hangsúlyt helyezek a vizsgálataim körébe eső elektronemissziós mechanizmusokra és a molekula-fragmentációra.

2.1 Atomok

A molekulák atomokból felépülő kötött rendszerek. Az alfejezetben ezért röviden összefoglalom az atomi elektronok jelölésrendszerét, szigorúan csak a munkám szempontjából legfontosabb jellemzőkre összpontosítva.

A spin-pálya kölcsönhatástól eltekintve az atomi elektronállapotokat 4 db egymástól független kvantumszámmal jellemezhetjük [11, 12, 13]:

- 1. *az n* főkvantumszámmal (*n*=1, 2, 3...),
- 2. az *l* mellékkvantumszámmal (*l*=0, 1, 2, 3... *n*-1), melyet felhasználva a $\sqrt{l(l+1)}$ kifejezés a pálya-impulzusmomentum vektor abszolút értékét adja $h/2\pi$ egységekben,
- 3. az *m* mágneses kvantumszámmal (*m*=-*l*,..., -1, 0, 1, ..., +*l*), mely a pályaimpulzusmomentum vektor adott irányú vetülete,
- 4. az s spinkvantumszámmal ($s=-\frac{1}{2}$, $+\frac{1}{2}$), mely az elektron sajátimpulzusmomentum vektorának egy adott irányú vetülete.

Az azonos *n* főkvantumszámmal jellemzett elektronok egy főhéjat alkotnak. Az n=1, 2, 3, 4... kvantumszámokkal jelzett főhéjak jelölésére rendre a spektroszkópiából átvett K, L, M, N... nagybetűket is használjuk. Hasonlóan, adott l=0, 1, 2, 3... mellékkvantumszámmal jellemzett elektronok egy alhéjat alkotnak, melyek jelölésére sorban az s, p, d, f... kisbetűket használjuk.

A többelektronos rendszerekben az elektronok mozgása nem független egymástól. Az egyes elektronok impulzusmomentumai elektromos és mágneses kölcsönhatások révén kapcsolódnak egymáshoz, mellyel kialakulnak az ún. impulzusmomentum csatolások. Ezek lehetnek pálya-pálya (\mathbf{l}_i , \mathbf{l}_k), spin-spin (\mathbf{s}_i , \mathbf{s}_k) és spin-pálya (\mathbf{l}_i , \mathbf{s}_k) kölcsönhatások. Két nevezetes határesetet különböztetünk meg, melyek az LS- vagy Russel-Saunders, és a jj- csatolás. Ezeket a [11, 12, 13] szakirodalom részletesen tárgyalja. A fejezet elején leírt kvantumszámok rendszerében az elektronkorrelációt is figyelembe véve az elektron mellék és mágneses kvantumszámát rendre a teljes-impulzusmomentum (J), és teljes-mágnesesmomentum (m_J) kvantumszámokkal helyettesítik.

Az atomok elektronszerkezetét az elektronkonfigurációjával adhatjuk meg, mely az elektronok fő és alhéiakon való eloszlásának а megadását ielenti. Az felírásakor elektronkonfiguráció az n főkvantumszám után íriuk az 1 mellékkvantumszám betűjelét, majd ezt zárójelbe téve, a zárójelen kívül jobb felső indexben megadjuk az adott alhéjon levő elektronok számát. Az oxigén alapállapoti elektronkonfigurációját pl. így írhatjuk: (1s)² (2s)²(2p)⁴.

2.2 Molekulák

2.2.1 Kötési mechanizmusok, molekulapályák, molekulák elektronállapotai

A több atomból álló kötött rendszereket molekuláknak nevezzük. A kémiai kötés kialakulása arra vezethető vissza, hogy molekuláris állapotban az alkotó atomok összenergiája kisebb mint a különálló atomoké.

Az atomok között kialakuló kötéseknek három alapvető típusát különböztetjük meg, melyek a természetben gyakran keverten jelennek meg [14]:

- 1. Az ionos kötés olyan elemek között alakul ki, melyek elektronkonfigurációja ionos formában stabilabb. Ekkor a kötés az ellentétes töltésű ionok Coulomb vonzása miatt alakul ki.
- A kovalens kötés az ún. kicserélődési kölcsönhatáson alapul, mely tisztán kvantummechanikai jelenség. Kovalens kötés estén a kötést kialakító elektronok mindkét atomhoz tartoznak.
- A Van der Waals kötés a molekulák dipólmomentumának köszönhetően alakul ki. Megkülönböztetünk: dipól-dipól, dipól-indukált dipól, és diszperziós erő hatására kialakuló Van der Waals kötéseket.

A molekula állapotot a legtöbb szakkönyv a legegyszerűbb molekulán, a hidrogén molekulán keresztül kezdi tárgyalni [11, 12, 14]. Itt két különböző eset lehetséges:

6 Irodalmi áttekintés

- 1. Amennviben különböző spinű elektronokkal rendelkező hidrogén atomokat közelítünk egymáshoz, a potenciális energia a távolság függvénvében a 2.1 ábra "a" görbéje szerint változik: az energia kezdetben a közelítéssel csökken, az ún. egyensúlyi kötéstávolságnál (a 2.1 ábrán R_k -val jelölve) elér egy minimumot, majd a távolságot tovább csökkentve meredeken elkezd nőni. A kialakult energiaminimum közelében a két atom stabil molekulát képez. Az energiaminimum abszolút értékét a molekula spektroszkópiai disszociációs energiájának nevezzük (a 2.1 ábrán E_k -val jelölve). Az a minimális energia, melyet a molekulával közölve, az szétesik két alapállapotú hidrogén atomra, az E_k energia és a vibrációs zéruspont-energia különbsége. A hidrogén molekulában az elektronok tartózkodási valószínűségére azt kapjuk, hogy kötött állapotban az elektronsűrűség a két atommag között nagyobb, mint másutt, és maximumot ér el a két atommagot összekötő egyenes felezőpontján átmenő merőleges síkban (csomósík). Az ilyen pályák a kötés kialakulását segítik, ezért kötő pályáknak nevezzük őket.
- 2. Azonos spinű elektronokat tartalmazó hidrogén atomok közelítésekor nem jön létre kémiai kötés. Itt a potenciális energia a távolság csökkenésével monoton nő (lásd 2.1 ábra "b" görbéje). Ebben az esetben az elektronsűrűség az atommagok között lecsökken, az atommagokat összekötő egyenes felezőpontján átmenő merőleges síkban az elektronok megtalálási valószínűség nulla lesz. Emiatt a magok taszító hatása fog dominálni. Az ilyen pályákat, melyek a kötés kialakulását akadályozzák *lazító pályáknak* hívjuk.

A molekulapályák, az atomi pályákból, azok kölcsönhatásával alakulnak ki. A kölcsönhatás során az atomi pályák energiája megváltozik [14, 15]. Kötő molekulapálya esetén a pályaenergia kisebb lesz a kiinduló atomi pálya energiájánál, lazító pálya esetén pedig nagyobb. A változás jó közelítéssel szimmetrikus a kiinduló atomi pálya energiájára. Kettőnél több atomból álló molekulák esetén a molekulapályák nem sorolhatók be egyértelműen a kötő vagy lazító pályák közé. Ugyanazon molekulapálya valamely magok között kötő, más magok között lazító jellegű lehet. Azt, hogy mely atomi pályák kombinálódhatnak molekulapályákká, három kritérium szabja meg:

- 1. A pályák átfedési integrálja. Az egymáshoz közel eső pályák erősen kölcsönhatnak egymással.
- 2. Az atomi pályák energiakülönbsége. Csak azok az atompályák hatnak kölcsön erősen egymással, és így hozzák létre a molekulapályákat, melyek energiakülönbsége kicsi.

 A pályák szimmetriája. Csak azok az atompályák kombinálódnak molekulapályákká, melyek azonos szimmetriájúak (azonos irreducibilis reprezentációba tartoznak).



2.1 ábra: A magtávolság - potenciális energia függvény sematikus ábrája "a" kötő, és "b" lazító pályák esetén. R_k az egyensúlyi kötéstávolság, E_k pedig a kötési energia, mindkettő tetszőleges egységekben megadva.

Az atompályákhoz hasonlóan minden egyes (kötő)molekulapályán is legfeljebb 2 db elektron található, ellentétes spinnel [15, 16]. Az energiaminimumra törekvés elve miatt a kialakuló molekulapályák közül mindig a kötő pályák töltődnek be először, mellyel a molekula stabilizálódik. Csak az esetleges további elektronok kerülhetnek lazító pályákra.

A molekulapályák egy másfajta csoportosításában megkülönböztetünk *lokalizált és delokalizált pályákat*. A lokalizált molekulapályák egy vagy két atomhoz tartoznak, ezáltal a molekulában egy jól meghatározott helyhez köthetők. A delokalizált molekulapályák az egész molekulára kiterjednek, így nem köthetők csak bizonyos atomokhoz, vagy kötésekhez.

Az atomokhoz hasonlóan a molekulák elektronszerkezetét is az elektronkonfiguráció felírásával jellemezhetjük. Ezt kétfajta reprezentációban tehetjük meg. Lineáris, néhány atomból álló molekulák esetén a molekulapályák jelölésére gyakran alkalmazzák a σ és π görög betűs jelöléseket [14, 12]. Ebben a

reprezentációban a 14 db elektronnal rendelkező N_2 molekula alapállapotú elektronkonfigurációja pl. a következő:

$$1\sigma_g^2 1\sigma_u^2 2\sigma_g^2 2\sigma_u^2 1\pi_u^4 3\sigma_g^2 \tag{1}$$

A felírásban a pályák görög betűjelzése (típusa) előtt feltüntetjük az energetikai sorrendet; jobb alsó sarokban jelezzük, hogy a pályához tartozó hullámfüggvény a szimmetriacentrumra való tükrözés esetén előjelet vált (u – ungerade), vagy nem vált előjelet (g – gerade); felső indexban pedig megadjuk a pályán elhelyezkedő elektronok számát. Magát a molekula állapotot is jellemezhetjük egy redukált jelöléssel. Pl. az N₂ molekula előbb felírt (1) állapotát ${}^{1}\Sigma_{g}^{+}$ -szal jelölhetjük.

Bizonyos típusú molekulákban nem lehet minden elektront kötő pályákon elhelyezni. Azokat az elektronpárokat, melyek csak egy atomhoz tartoznak, *magányos pároknak* nevezzük. A magányos párokkal rendelkező nemlineáris molekulák elektronkonfigurációjának felírására általában egy másik jelölésmódot használunk, ahol az egyes pályák szimmetriáit tüntetjük fel. Itt kisbetűvel felírjuk az adott irreducibilis reprezentáció betűjelét, elé odaírjuk az adott pálya energetikai sorrendjét megadó számot, majd ezt zárójelbe téve felső indexben jelezzük a pályán levő elektronok számát. A H₂O és CH₄ molekula alapállapotú elektronkonfigurációja ebben a jelölésrendszerben a következőképpen írható:

H₂O:
$$(1a_1)^2 (2a_1)^2 (2b_2)^2 (3a_1)^2 (1b_1)^2$$

CH₄: $(1a_1)^2 (2a_1)^2 (1t_2)^6$ (2)

Ahhoz, hogy molekulapályákat valamilyen irreducibilis reprezentációba soroljuk, meg kell határoznunk a molekula szimmetriáit. Ez az alábbi öt szimmetriaművelettel szembeni viselkedés vizsgálatát jelenti:

- egységelem (jele: E)
- szimmetriasíkra való tükrözés (jele: σ)
- szimmetriacentrumra való tükrözésre (jele: i)
- n szeres forgású szimmetriatengely körül való elforgatás (jele: C_n)
- n szeres forgástükrözés tengely körüli forgatás, majd tükrözés (jele: S_n)

Ha megkeressük azon műveleteket, melyek a molekulát önmagába viszik át, ezen szimmetriaműveletek összessége kijelöl egy szimmetriacsoportot, melybe a molekula tartozik (2.3 ábra a következő alfejezetben). A csoportszimmetriák ismeretében az A, B, T... és az *a*, *b*, *t*... stb. irreducibilis reprezentáció betűjeleit az ún. *karaktertáblákból*

olvashatjuk ki. A molekulákat a fentiek alapján alacsony szimmetriájú, vagy magas szimmetriájú speciális csoportokba sorolhatjuk.

2.2.2 Az általunk vizsgált három molekula fontosabb tulajdonságai

A N₂ molekula a szimmetriáit tekintve $D_{\infty h}$ csoportba tartozik (2.2 ábra a) része). A molekula két atomja háromszoros kovalens kötéssel kapcsolódik egymáshoz, ezért disszociációs küszöbenergiája viszonylag magas, 9,9 eV. Első *ionizációs energiája* (lásd a későbbi, ionizációt bemutató 2.3.1 fejezetben) 15,6 eV. A kötő molekulapályákon és a nitrogén atomok 1s elektronjain kívül a molekula atomonként 1-1 magányos elektronpárral rendelkezik, melyek gyakorlatilag nem vesznek részt kötésben. Mint minden azonos atomokból felépülő molekula esetén, a molekulapályák nem torzulnak el egyik atom irányába sem, mivel mindkét atom elektronegativitása azonos. Emiatt a molekula apoláros.



2.2 ábra: Az általunk vizsgált három molekula egyensúlyi geometriájának, és szimmetriáinak sematikus ábrája: a) N_2 , b) H_2O és c) CH_4 molekula.

A H₂O molekula a C_{2v} szimmetriacsoportba tartozik (2.2 ábra b) része). Alapállapotban geometriája "V" alakú, bár ismert olyan gerjesztett állapota melyhez tartozó geometria lineáris. A két hidrogén atom egyszeres kovalens kötéssel kapcsolódik az oxigénhez. Az alapállapotú molekulában az O-H kötéshossz 1,81 a.e., a H-O-H kötésszög ~104°. Disszociációs küszöbenergiája 4,4 eV. Első ionizációs energiája 12,6 eV. Az oxigén atom az 1s törzselektronokon kívül további 2 db magányos párral rendelkezik, melyek a $3a_1$ és $1b_1$ molekulapályákat alkotják. Alapállapotban a molekulában egyetlen elektron sincs lazító pályán, a legkisebb energiájú lazító pálya a $2b_2$, melyre csak gerjesztett állapotban kerül elektron. Mivel az oxigén atom elektronegativitása sokkal nagyobb, mint a hidrogén atomoké, a kötések erősen torzultak. Emiatt a vízmolekula erősen poláros: az oxigén felőli oldalon részlegesen negatív, a hidrogének felőli oldalon, részlegesen pozitív töltésű. Ezen polarizáció az oka a gyenge intermolekuláris kötés, az ún. hidrogén-híd kötés kialakulásának a vízmolekulák között. Továbbá, a víz jó poláros oldószer, és az élő szervezetek egyik alapvető építőeleme.

A CH₄ molekula tetraéderes szerkezete a T_d szimmetriacsoportba tartozik, (2.2 ábra c) része). A metán molekula 4 hidrogén atomja szintén egyszeres kovalens kötéssel kapcsolódik a szénatomhoz. A molekula egyensúlyi szerkezetében a hidrogének a lehető legtávolabb helyezkednek el egymástól, egy tetraéder csúcspontjaiban, a szénatom pedig a tetraéder tömegközéppontjában. A metán disszociációs küszöbenergiája 4,7 eV. Első ionizációs energiája 12,7 eV. A metán molekulában a szénatom minden vegyérték elektronja kötésben vesz részt, mindegyikből kötő jellegű molekulapálya épül fel, melyek delokalizáltak. A kötések erősen polárosak, az elektronok a szénatom köré koncentrálódnak annak nagy elektronegativitása miatt. A molekula szimmetriája miatt azonban a töltések súlypontjai egybeesnek, így a teljes molekula apoláros.

2.3 Atomi és molekuláris ütközésekben lejátszódó alapvető folyamatok

Az atomok és molekulák vizsgálatához a *céltárgyat* először gerjesztenünk kell valamilyen gerjesztő forrással. Az ütközéses fizikában ez a gerjesztőforrás a *lövedék*, mely lényegében bármi lehet, amiből megfelelő nyalábot tudunk előállítani (fotonok, elektronok, ionok, atomok, molekulaionok stb.). Jelen munkában gerjesztőforrásként egyszeresen töltött, keV - MeV energiájú ionokat használunk, céltárgyként pedig Ar atomot valamint N₂, H₂O, CH₄ molekulákat. A lövedék és céltárgy kölcsönhatása alapvetően kétféle lehet: *rugalmas ütközés*, melyben az ütköző partnerek belső energiája nem változik, illetve *rugalmatlan ütközés*, pl. amikor a lövedék energiájának egy részét átadja a céltárgynak, mely energianövekménynek köszönhetően az gerjesztődik, vagy ha elegendően nagy volt az energiaátadás, akkor ionizálódik. Megjegyzendő, hogy léteznek ún. *szuperrugalmas* ütközések is, melyekben a céltárgy belső energiája a gerjesztődés helyett a relaxáció irányába változik, pl. amikor a céltárgy az ütközés előtt gerjesztett állapotban van, és az ütközés során ezt a gerjesztési energiát (vagy annak egy részét) átadja a lövedéknek.

2.3.1 Gerjesztés, ionizáció, többszörös ionizáció

Atomok esetén a gerjesztést, ionizációt, valamint az elektronfelhő ezt követő relaxációját és ezek különböző típusait összefoglaló néven *elektronátmeneteknek* nevezzük. Az elektronátmenetek mechanizmusa az atomok és molekulák esetén nagyon hasonló, ezért a további fejezetekben, ha azt külön nem jelzem, az atomokra és molekulákra jellemző folyamatokat együtt tárgyalom. Az egyszerűség kedvéért ahol az megengedhető, az ábrákon is az atomi ütközési folyamatokat mutatom be.

Rugalmatlan ütközések során az atom (vagy molekula) egy elektronja magasabb – alapállapotban be nem töltött – kötött állapotba kerülhet. Ezt a folyamatot *elektrongerjesztésnek* nevezzük. A kötött állapotból kötött állapotba történő átmenetek mind atomok, mind molekulák esetén kiválasztási szabályoknak megfelelően történnek [12, 15]. Ha az ütközésben a céltárgy belső energia növekménye eléri azt a küszöbenergiát, mely szükséges az adott elektron atomból történő eltávolításához (ionizációs energia), akkor az elektron szabad, azaz kontinuum állapotba kerül, az atom pedig ionizálódik. Töltött részecske bombázás esetén (P^+) a céltárgy (M) ionizációja többnyire a gerjesztéssel együtt jelenik meg, aminek eredményeként egy szabad elektron (e^-), és egy gerjesztett állapotú ((3)-ban *-gal jelölve) ion, vagy molekulaion keletkezik:

$$P^{+} + M \rightarrow (P^{+})^{*} + (M^{+})^{*} + e^{-}$$
 (3)

Egy atom, vagy molekula első *ionizációs energiájának* nevezzük azt a küszöbenergiát, mellyel a leggyengébben kötött elektronját kontinuum állapotba visszük. Elég erős perturbációnál szimultán akár több elektron is elhagyhatja az atomot, melynek köszönhetően többszörösen töltött ion keletkezhet. A második, harmadik, ill. negyedik elektron leszakításához tartozó küszöbenergiát rendre második, harmadik stb. ionizációs energiának nevezzük. Molekulák esetén az első ionizációs energia általában közel esik az alkotó atomok ionizációs energiái közül a legkisebbhez.

Míg az atomok által elnyelt energia csak elektronátmenetekre (gerjesztés, vagy ionizáció) fordítódhat, molekulák esetén az elektrongerjesztések mellett *rezgési* (*vibrációs*) *és forgási* (*rotációs*) *állapotokat* is gerjeszthetünk [13, 16, 17]. Az elektrongerjesztésekhez hasonlóan, a vibrációs és rotációs energiaszintek is kvantáltak, és kiválasztási szabályokat követnek, melyeket a [12, 15], és [16] irodalmak részletesen tárgyalnak. Egy molekula teljes belső energiája ezért három tag összegeként írható fel:

$$E_{telies} = E_{elektron} + E_{vibr} + E_{rot} \quad ahol \quad E_{elektron} \gg E_{vibr} > E_{rot}.$$
(4)

A teljes energia megadásánál mindig az elektrongerjesztések a meghatározóak, a vibráció és rotáció ennél nagyságrendekkel kisebb járulékot adnak. Ennek megfelelően az abszorbeált (vagy relaxációban kisugárzott) foton energiája is az elektronátmenetek esetén a legnagyobb, mely az elektromágneses spektrum látható és ultraibolya tartományába esik. A vibrációs abszorpció vonalai a közeli infravörösbe, a rotációsak pedig a távoli infravörös tartományba esnek. A különböző sugárzásos átmenetek vizsgálatával, és az ezen keresztül történő molekulaszerkezeti információk gyűjtésével a molekulaspektroszkópia [16, 18] foglalkozik (Infravörös-, UV-, Raman spektroszkópia stb.)

2.3 ábra: A vertikális, vagy Franck-Condon elektron átmenetek sematikus ábrája. Molekulák esetén az elnyelt, és relaxációból származó kisugárzott foton energiája nem egyezik meg, az abszorpció és relaxáció között eltelt időintervallumban bekövetkező rezgési átmenetek miatt.



A molekulák tárgyalását, és kvantummechanikai leírását nehezíti, hogy a fent leírt három energiajárulék "kölcsönhat" egymással. Pl. a megváltozott gerjesztett elektronos állapotot a vibrációs állapotok változása csak lassan követi a magok nagy tömege miatt. Ezért a gerjesztés utáni rezgési állapot általában nem az adott elektrongerjesztéshez tartozó alapállapot. Ez az ún. Franck-Condon elv [12, 15, 17], melyet jól szemléltethetünk a vertikális elektronátmenet képben (2.3 ábra). Az elv kimondja továbbá, hogy "a molekula átmenete abba a felső rezgési állapotba irányul, melynek hullámfüggvénye a legjobban hasonlít a nem gerjesztett elektronállapothoz tartozó rezgési alapállapot rezgési hullámfüggvényére" [16]. A Franck-Condon elv teszi lehetővé a molekulák kvantummechanikai tárgyalását is, melyre a Born-

Oppenheimer -közelítést ("álló atomi centrumok közelítés") alkalmazzák általánosan. A módszer részletes leírása a [12, 15] irodalomban található.

2.3.2 Relaxációs folyamatok

Az atomi és molekuláris ütközésekből nyerhető információ egy jelentős része nem közvetlenül a gerjesztésből, vagy ionizációból, hanem az ezeket követő relaxációs folyamatokból származik. Relaxációnak tekinthető minden olyan folyamat, mellyel az atom, vagy molekula az ütközésben szerzett többletenergiától, vagy annak egy részétől megszabadul. Ez végbemehet foton, vagy töltött részecske emisszióval (elektron vagy fragmentum kibocsátással).

Bár a sugárzásos relaxáció kívül esik a dolgozat témáján, úgy gondolom, néhány szót megérdemel. Itt a gerjesztett állapotban (E_n) tartózkodó elektron alapállapotba, vagy alacsonyabb energiájú gerjesztett állapotba (E_m) történő átmenet közben a megengedett szintek közti energiakülönbséget egy hv energiájú foton formájában bocsátja ki (5) (2.4 ábra) [13].

$$E_n - E_m = h \nu \tag{5}$$

Belső héj átmenetek esetén (ahol az energiakülönbségek a megengedett szintek között nagyobbak) *röntgensugárzás*, külső héj átmenetek esetén UV vagy látható fény keletkezik. Említést érdemel még a molekulák azon tulajdonsága, miszerint az abszorbeált és emittált foton frekvenciája – ellentétben az atomokkal – általában nem egyezik meg [16]. Ez a Franck-Condon elv következménye. A forgási és rezgési átmenetek közt léteznek sugárzásmentes átmenetek is, amikor a gerjesztési energia közvetlenül a molekula környezetének adódik át.

A röntgen folyamattal versengő folyamat, amikor a belső héjon keltett vakancia betöltődése során a felszabaduló energiát egy elektron viszi el, mely ezzel kontinuum állapotba kerül. Ezt a folyamatot, amikor a kiinduló állapot egy belsőhéj-vakancia, a végállapot pedig egy kétszeresen ionizált atom vagy molekula, *Auger-folyamatnak* nevezzük [19, 20, 21] (2.4 ábra). Mivel a kirepülő, ún. Auger elektron energiája két diszkrét állapot közti átmenetből származik, az Auger elektron kinetikus energiája (T_{Auger}) is diszkrét, és egyben anyagi minőségre jellemző lesz [20]:

$$T_{Auger} = E_n - E_m - \left| E_{k \ddot{o} t \epsilon s i} \right| \tag{6}$$

ahol E_n és E_m az átmenetben részt vevő energiaszintek ($E_n > E_m$), $E_{kötési}$ pedig a kirepülő Auger elektron kötési energiája. Értelemszerűen a folyamat csak akkor megy végbe, ha $E_n - E_m > |E_{kötési}|$.



2.4 ábra: Alapvető gerjesztő, és relaxációs folyamatok bemutatása. Első oszlop: egyszeres belső héj vakancia keletkezése, alatta kétszeres külső héj gerjesztés. Második oszlop: sugárzásos relaxáció (pl.: röntgen emisszió), Auger-folyamat, és autoionizáció.

Ha a kiindulási állapot az atomban vagy molekulában, csak egy tiszta belső héj vakancia (mint alapállapothoz viszonyított módosulás), diagram Auger-átmenetről

beszélünk. Szatellit átmenetek esetén a vakancián kívül, még más módosulás is jelen van, pl. gerjesztés, polarizáció stb. ami az energiaszintek, és ezen keresztül az Auger elektron kinetikus energiájának csekély mértékű módosulását eredményezi. Esetenként az Auger elektronemissziót követően további átrendeződési folyamatok is lejátszódnak. A Shake-up folyamatban az Auger elektronemisszió utáni átrendeződési folyamatokból származó energia további egy vagy több elektront magasabb energiaszintre gerjeszt. Shake-off esetén pedig ezek az elektronok a kontinuumba gerjesztődnek, vagyis további ionizációk játszódnak le. Az Auger-folyamathoz hasonló relaxációs folyamat az autoionizáció is. Ekkor a kiindulási, kétszeresen gerjesztett állapotot követő átmenetben az egyik elektron alacsonyabb energiaszintre kerül, az átmenet energiáját pedig a másik, még gerjesztett állapotú elektron viszi el, mely ennek köszönhetően kontinuum állapotba kerül (lásd 2.4 ábra).

A molekulák szétesését, mint rájuk jellemző speciális relaxációs folyamatot a 2.3.6 és 2.3.7 fejezetekben tárgyalom részletesen.

2.3.3 Elektronemissziós mechanizmusok ion-molekula ütközésekben

A molekuláris ionizáció ionbombázással történő vizsgálata közel egyidős az atomi elektronemissziós spektrumok tanulmányozásával, és az 1960-as évekre tekint vissza. Bár az első, molekuláris ütközésekből származó energia és megfigyelési szög szerint differenciális elektronemissziós spektrumokat [22, 23] még torzították az instrumentális effektusok, a spektrumok lefutását, és a jellemző fontosabb struktúrákat jól visszaadták. A szisztematikus vizsgálatok a 70-es években kezdődtek. Stolterfoht [24], Wilson és Thoburen [25], valamint Bunch [26] úttörő munkája számos elektronemissziós mechanizmust derített fel, melyek jó részét jelenleg is tanulmányozzák.

A töltött részecske bombázással kiváltott céltárgy-ionizáció több különböző mechanizmus eredménye lehet. Ezek egyike a már tárgyalt (2.3.2 fejezet) Augerelektronemisszió. A további elektronemissziós mechanizmusok csoportosítása az ütközésben részt vevő testek száma, valamint az emittált elektronok energia- és szögeloszlását befolyásoló atomi centrumok száma alapján történik. Amennyiben a lövedék a céltárgy kötött elektronjával közvetlenül ütközik, a kéttest kölcsönhatás olyan erős, hogy a további partnerekkel való kölcsönhatások járuléka elhanyagolható. Ekkor tiszta kéttest-ütközésekről (angolul Binary Encounter process, röviden BE) beszélünk (lásd 2.5 ábra a) része), melyben a kilépő elektron energiája a (7) kifejezés szerint függ a lövedéksebesség irányához képesti megfigyelési szögtől: 0° -nál a legnagyobb, 90° -nál pedig nullára csökken [27]:

$$E_{elektron} = 4 E_{lövedék} \cos^2(\theta) \tag{7}$$

Az elektronemissziós mechanizmusok egy jelentős részében az ütközésben részt vevő mindhárom test (lövedék, aktív elektron, céltárgy atommag) szerepet játszik [27, 28]. Ekkor a három test kölcsönhatásának eredője adja a különböző elektronemissziós mechanizmusokat. Amennyiben a kilépő elektron energia- és szögeloszlását lényegében az egyik atomi centrumon (pl. az atommag Coulomb-terén) történő szóródás határozza meg, a másik atomi centrum tere csak rövid, vagy relatíve kis perturbációt jelent, egycentrumú elektronemisszióról beszélünk (2.5 ábra b) részén az 1-gyel jelölt görbe). Ha a kilépő elektron mind a céltárgy atommagjával, mind a távozó lövedék Coulomb-terével erősen hat kölcsön, mindkét centrum módosító hatása jelentkezik az emittált elektronok energia és szögeloszlásában. Az ilyen mechanizmusokat összefoglaló néven kétcentrumú elektronemissziónak nevezzük (lásd 2.5 ábra b) részén a 2-vel jelölt görbe).

A többcentrumú elektronemisszió kifejezetten látványos előreszórást eredményez lassú, nagy töltésű ion-lövedékek (angolul "slow highly charged ions", röviden "HCI") esetén [28, 29, 30, 31]. Ekkor ugyanis a céltárgyat elhagyó elektronra egy lassan távozó nagy töltésű lövedék erős Coulomb vonzása hat, ami a kis energiájú ($E_e < ~30$ eV) elektronok egy részét előre szögekbe ($\theta < 90^\circ$) téríti el. Ez az elektronspektrum kis energiás részében többletet fog okozni a kis megfigyelési szögeknél, és deficitet hátraszögekben. Az így kapott anizotróp elektroneloszlásból következtetni lehet a lövedék-ion centrumának fontosságára, vagy más szavakkal, az ütközés utáni kölcsönhatás erősségére. Fainstein és munkatársai [32] erre egy egyszerű, előre-hátra anizotrópiát leíró paramétert (*a*) alkalmaztak, melyet a következő formula ad meg:

$$a(v_e, \theta) = \frac{\sigma(v_e, \theta) - \sigma(v_e, \pi - \theta)}{\sigma(v_e, \theta) + \sigma(v_e, \pi - \theta)} , \qquad (8)$$

ahol σ a hatáskeresztmetszetet, v_e az elektron sebességét, és θ a megfigyelési szöget jelenti.

Tribedi és munkatársai az elmúlt tíz évben részletesen vizsgálták a többcentrumú elektronemissziót csupasz szénionokkal kiváltott molekuláris ionizációban [33, 34, 35, 36]. A mért adatok CDW (Continuum Distorted Wave) és CDW-EIS (Continuum Distorted Wave Eikonal Initial States) elméletekkel (ezek áttekintése később, a 2.4.4 fejezetben következik) való összehasonlításából kiderült, hogy a szórócentrumok hatását nem elég csak az ütközés után figyelembe venni, azzal az ütközés teljes időtartamában számolni kell. (Emiatt a szakirodalomban elterjedt "PCI" – vagyis

ütközés utáni kölcsönhatás – elnevezés nem minden esetben helytálló.) Uracil molekulán ($C_4H_4N_2O_2$) végzett méréseikben Tribedi és munkatársai azt is kimutatták, hogy sok szórócentrum jelenléte esetén az elektronemisszió anizotrópiája a nagyobb energiás elektronokon is érzékelhető egészen ~80 eV elektronenergiáig [34].



2.5 ábra: A különböző elektronemissziós mechanizmusok sematikus ábrája: a) direkt kéttest ütközés, b) Coulomb-ionizáció. A b) ábrán 1-el jelölt nyíl az egycentrumú, a 2-vel jelölt a kétcentrumú elektronemissziót szemlélteti. A b) ábrán a céltárgy közepén levő fekete pont az atommagot reprezentálja.

A kétcentrumú elektronemisszió két speciális esete külön figyelmet érdemel:

 Elektron befogás történhet a lövedék kontinuumába (angolul "electron capture to the continuum", röviden ECC), amikor a kirepülő elektron sebessége körülbelül megegyezik a lövedék sebességével. Ekkor az elektron a távozó lövedék Coulomb-terében eltérül a lövedék sebességének irányába, és egy ideig együtt haladnak, megközelítőleg egy irányba (lásd a 2.5 ábra b) részén a 2-essel jelölt folyamat). Az ilyen elektronok 0° megfigyelési szög közelében éles csúcsot adnak az elektronspektrum nagy energiás részén. Ez az ún. *Cusp-csúcs*, melyet Sarkadi és munkatársai az Atomkiban is részletesen tanulmányoztak mind kísérleti [37, 38], mind elméleti módszerekkel [39, 40].

2.6 ábra: A Fermi-gyorsítás sematikus ábrája háromszoros szóródás esetén. Az egyes szóródások sorban fentről lefelé időrendi sorrendben láthatók, a rövid jelölésükkel együtt. Az ábra forrása a [41] hivatkozás.



2. A Fermi-gyorsítás (Fermi-shuttle) a kilépő elektron többszörös szóródását jelenti a céltárgy és a távozó lövedék közös Coulomb terében, miközben az elektron sebessége minden szóródásban növekszik. A Fermi-gyorsítás mechanizmusát mutatja sematikusan a 2.6 ábra, ahol a céltárgyról származó elektron háromszoros szóródását látjuk: az első szóródás a közeledő lövedéken történik (P), majd a visszaszórt elektron a céltárgy Coulomb terén szóródik (T), és végül másodszor is szóródik a lövedéken (P). A folyamatot röviden P-T-P rövidítéssel jelölhetjük. Az így kilépő többszörösen szóródott elektron megnövekedett sebességét (v_e) a következő közelítő képletekkel számolhatjuk [41, 42]:

$$v_e = V \left(\cos \theta + \sqrt{\cos^2 \theta + 2m(2m+2)} \right) \quad ha \quad m < n$$

$$v_e = 2nV \qquad ha \quad m = n \tag{9}$$

ahol *m* a céltárgyon, *n* pedig a lövedéken való szóródások száma, *V* a lövedék sebessége, θ pedig a megfigyelési szög. A folyamatot az elmúlt évtizedekben széles körben vizsgálták [43, 44, 45]. Az Atomkiban Sulik és munkatársai végeztek vizsgálatokat közepes lövedéksebességeken [41, 42, 46, 47]. Eredményeik leírására klasszikus pályájú Monte-Carlo (CTMC) szimulációt használtak, mely a Fermi-gyorsítás leírására az eddig ismert legjobb közelítés.

Részlegesen lefosztott lövedékek esetén a megmaradó elektronok leárnyékolják a magtöltést [48, 49], így a lövedék és céltárgy távoli ütközéseiben (lágy ütközések) az iontöltés a meghatározó. Közeli ütközésekben azonban a lövedék ún. effektív töltése esetenként jelentősen meghaladhatja az iontöltést, drasztikusan megnövelve ezzel az ionizációs hatáskeresztmetszetet. Sarkadi hidrogén atom - nemesgáz ütközésekben megmutatta, hogy a semleges lövedékek ionizációs hatáskeresztmetszete alig marad el az egyszeresen töltött ionokétól. sőt a két és háromszoros ionizáció hatáskeresztmetszete is jelentős lehet [50]. Közeli ütközésekben az effektív töltés (Z_P^{eff}) , és ezen keresztül az elektronemisszió hatáskeresztmetszetének a növekedése két okra vezethető vissza:

- Igen közeli, kis ütközési paraméterrel (vagy impakt paraméterrel) (b) jellemezhető ütközésekben, ahol a lövedék és céltárgy elektronfelhői már átfednek, csökken az elektronok magtöltés árnyékoló hatása, így a céltárgy egyes elektronjai "beúszva" a lövedék mag közelébe hirtelen egy megnövekedett Coulomb-potenciált éreznek. Ez a rántásszerű erő szimultán akár több elektront is leszakíthat a céltárgy molekuláról.
- 2. Közeli ütközésekben, átfedő elektronfelhők esetén a céltárgy és lövedék elektronjainak a Coulomb-interakciója is járulékot adhat az ionizációs hatáskeresztmetszethez. Stolterfoht szerint a lövedék elektronja betölthet aktív, ill. passzív szerepet az ütközésben [27]. A passzív elektron szerepe csak az árnyékolás, állapota az ütközés során nem változik. Az aktív lövedék-elektron céltárgy-elektronnal való kölcsönhatása során mindkét elektron állapota megváltozik. Az elektron-elektron kölcsönhatás eredményeként az effektív töltés (Z_p^{eff}) melyet Kövér és munkatársai az ionizációs hatáskeresztmetszetből származtattak akár meg is haladhatja a magtöltést [51].

Többelektronos rendszerekre további egyszerű szabályok is érvényesek. Több ekvivalens elektron tartalmazó héj ionizációjának hatáskeresztmetszete például arányos a héjon levő elektronok számával. Ennek általánosítása az a skálázási szabály, melyet Toburen és munkatársai találtak a `70-es években. Eszerint proton-szénhidrogén molekula ütközésekben az elektronemissziós hatáskeresztmetszet skálázható a célmolekula gyengén kötött (vegyérték-) elektronjainak a számával [52]. Itoh és munkatársai [53] nemrég megmutatták, hogy ez a skálázási szabály az Uracil molekulára is érvényes. A jelen dolgozatban a skálázási szabályt kiterjesztjük a nem szénhidrogén jellegű víz és nitrogén molekulákra is.

2.3.4 A kétszeresen differenciális elektronemissziós spektrum

A kétszeresen differenciális elektronemissziós hatáskeresztmetszetek szintjén az atomi és molekuláris ütközésekből származó spektrumokban gyakorlatilag ugyanazok a struktúrák jelennek meg.



2.7 ábra: CDW-EIS módszerrel meghatározott kétszeresen differenciális elektronemissziós spektrum. A jellemző struktúrák a 2.3.3 fejezetben tárgyalt mechanizmusok eredményei. A különböző energiatartományokban más-más folyamatok dominálnak, melyek jelölései az ábrán az angol szakirodalomban található rövidítések: lágy ütközések (SC), kétcentrumú elektronemisszió (TCEE), elektron befogás a kontinuumba (ECC), és direkt kéttest ütközés (BE). Az ábra forrása a [27] hivatkozás.

A 2.7 ábra CDW-EIS módszerrel számolt elektron DDCS spektrumot mutat majdnem teljesen lecsupaszított 25 MeV/u Mo⁴⁰⁺ + He ütközésben 5° megfigyelési szög alatt. Látható, hogy a fenti fejezetekben leírt folyamatok a kétszeresen differenciális elektronspektrum különböző energiatartományaiban adnak járulékot, ill. jellegzetes struktúrákat hoznak létre. Az általános struktúrák mellett további, specifikusan az adott ütközési rendszerre jellemző csúcsok és lefutásbeli különbségek jelentkezhetnek a spektrumokban. Ilyenek lehetnek pl. az Auger-csúcsok, Fermi-gyorsításból, vagy a lövedék elektronvesztéséből származó struktúrák, melyek mintegy "ráülnek" a fenti általános spektrumra.

2.3.5 Elektronbefogás, elektronvesztés és transzfer ionizáció

Amennyiben nem teljesen lefosztott lövedék ionokkal bombázzuk a céltárgyat, a 2.3.1 pontban bemutatott folyamatok (gerjesztés, ionizáció, többszörös ionizáció) a lövedék elektronhéjában is bekövetkezhetnek [54, 55]. Megkülönböztetésül a tisztán a céltárgyon lejátszódó folyamatoktól ezek némelyikét külön elnevezéssel is szokták illetni, például a lövedék ionizációját gyakran *elektronvesztési* folyamatként említik. Speciális esete ennek az *elektron vesztés a kontinuumba* (az angol "electron loss to the continuum" szóösszetételből röviden ELC) amikor is a lövedék, és az arról távozó elektron még sokáig együtt haladnak, ill. ez idő alatt köztük Coulomb kölcsönhatás áll fenn. Atomok esetén mindezek a folyamatok egy centrum terében leírhatók. A 2.3.1 pontban ez a centrum a céltárgy magja, a lövedék gerjesztésénél, vagy ionizációjánál pedig a lövedék magja.

Ionbombázás esetén a fentieken kívül említést érdemelnek a következő, legalább kétcentrumú folyamatok:

- *Elektron befogás* esetén a céltárgy egyik elektronját a lövedék ion befogja egy kötött állapotába. Ez általában egy magasan gerjesztett állapot, ahonnan a lövedék-rendszer lassan relaxálódik, de befogódhat az elektron alapállapotba, vagy ahhoz közeli energiaszintre is. Speciális esete az elektronbefogás a kontinuumba, melyet a 2.3.3 fejezetben már tárgyaltam.
- A *transzfer ionizáció* esetén az ütközésben a lövedék egy elektront átvesz a céltárgytól, miközben annak egy másik elektronját szabad állapotba juttatja. Ez általában nagy töltésű ion lövedékekre jellemző, melyek erős Coulomb terükkel képesek többszörös elektronátmeneteket létrehozni.

2.3.6 Molekulák szétesése

Molekulák esetén az atomi ütközésekben lejátszódó folyamatok repertoárja kibővül egy további mechanizmussal, ez pedig a céltárgy szétesése. Ez a szakirodalomban *fragmentáció vagy disszociáció* néven szerepel. A két kifejezést ugyan gyakran szinonimaként használják, mégsem teljesen ugyanazt jelentik. A fragmentáció kifejezés az ütközésben közvetlenül bekövetkező feldarabolódást is jelentheti, melyet úgy képzelhetünk, mintha a lövedék az ütközésben kiszakítana egy darabot a molekulából. A disszociáció jelentése szűkebb, inkább olyan fragmentációt jelent, amely kevésbé erőteljes, az interakció után többnyire időben megkésve bekövetkező, másodlagos folyamat. Az általunk mért spektrumokat inkább ez utóbbi folyamatból származó molekulatöredékek alkotják. A továbbiakban – ahogy azt a legtöbb szakirodalom teszi – a két szót én is szinonimaként használom.

A molekulák szétesését többféle primer folyamat okozhatja:

- Gerjesztés hatására kötőpályán lévő elektronok kerülhetnek lazítópályákra, és ez a molekula szétesését okozhatja. Vibrációs és rotációs gerjesztések is okozhatnak disszociációt, ha a molekula által elnyelt energia meghaladja a disszociációs küszöbenergiát [16].
- 2. Az ionizáció okozta szétesésben a molekula egy vagy több elektronjának az eltávolítása a primer folyamat. Ha egy kötésben részt vevő elektront távolítunk el a molekulából, a kötés gyengülése miatt az bizonyos valószínűséggel disszociál. Egy magányos párból történő elektron eltávolítása azonban nem veszélyezteti különösebben a molekula stabilitását [12]. A többszörös ionizációt viszont legyen az magányos párok, vagy kötő elektronok eltávolítása nagy valószínűséggel a molekula szétesése követi. Ekkor a molekulán belül kialakult pozitív töltéscentrumok taszítani fogják egymást, mely disszociációhoz vezethet. A szakirodalomban ezt a folyamatot a molekulák Coulomb-robbanásának nevezik [56]. Ebben a tekintetben a lövedékre történő elektronbefogást is ionizációnak tekintjük.
- 3. A *direkt kéttest ütközésben* a lövedék atomokat, vagy egész atomcsoportokat szakíthat le a céltárgy molekuláról. Az ilyen erőteljes ütközésekben a fragmentumok energiáját nagyrészt az átadott impulzus határozza meg [57].

Adott molekulák különböző szétesési módjait *fragmentációs csatornáknak* nevezzük. A víz molekula egy (önkényesen kiválasztott) fragmentációs csatornáját pl. így írhatjuk:

$$H_2O^{2^+} \rightarrow O^+ + H^+ + H^0 \tag{10}$$

A fragmentációs csatorna felírásakor megadjuk az ütközés következtében primer termékként létrejött *tranziens molekulaion* képletét és töltését, majd a nyíl után a disszociációban keletkezett töredékek kémiai képletét, és töltésállapotaikat. Ha a tranziens molekulaion gerjesztett állapotban jön létre, ezt többnyire külön fragmentációs csatornának tekintjük, amelynek energiamérlege eltér az alapállapoti tranziens molekulaionétól. Egy adott ütközési rendszer esetén megjelenő fragmentációs csatornák összessége, és ezek intenzitás eloszlása megadja az ütközési rendszerre jellemző *fragmentációs mintázatot*. Mivel dolgozatomban a Coulomb-robbanás energiatartományába eső fragmentumok energia és szögeloszlását vizsgálom az alfejezet további részeiben, és a következő alfejezetben ezen fragmentumok jellemzőit és irodalmát tekintem át.

Az ion-molekula ütközésekben lejátszódó molekula szétesés egy igen bonyolult folvamat sok lehetséges kiindulási- és végállapottal. Ennek oka, hogy az ilven széles energiatartományban ütközésekben az energiaátadás mozoghat, első közelítésben 0 eV-től egészen a lövedék kinetikus energiájáig terjedhet. Emiatt számos lehetséges átmeneti (tranziens) molekulaion jöhet létre. A végállapotokat tekintve Alvarado és munkatársai [7], valamint Gracia és munkatársai [58] szerint a molekula lehetséges fragmentációs csatornáit a lövedék sebességén és töltésén keresztül, a kölcsönhatás erőssége határolja be. Azaz, a kiindulási állapot csupán leszűkíti a lehetséges végállapotok számát. Egy egyszerűsített képben a lövedék-céltárgy kölcsönhatás erősségét az ún. Bohr-Sommerfeld paraméterrel (k_{BS}) jellemezhetjük [59], melvet a lövedék töltése $(q_{\rm L})$ és sebessége $(V_{\rm L})$ határoz meg:

$$k_{BS} = \frac{q_L}{V_L}.$$
(11)

А kialakult tranziens molekulaion tulajdonságai megszabják а lehetséges fragmentációs csatornák körét [7, 10, 60]. Az ütközés során létrejött molekulaion disszociációval szemben lehet stabil, metastabil, vagy néhányszor 10⁻¹⁴ s alatt disszociálhat. molekulák többszörös ionizációja kifejezetten А kedvez а disszociációnak (lásd a Coulomb-robbanást bemutató következő alfejezetet). molekulaionok Többszörösen ionizált létrejöhetnek közvetlenül az ütközés következtében, vagy az egyszeres ionizációt követő másodlagos folyamatokban. Scully és munkatársai [61] e⁻+H₂O ütközéseket vizsgálva kimutatták, hogy a disszociációnál nagyjából egy nagyságrenddel gyorsabban lejátszódó Auger-folyamatok hatékonyan növelhetik a többszörös ionizáció hatáskeresztmetszetét. Egy 2016-os tanulmányban Wolff és munkatársai [62] a OH⁺+H⁺ csatorna hozamának egy jelentős részét Augerfolyamatnak és autoionizációnak tulajdonítják. Megállapítják, hogy a csatornában emittált H⁺ fragmentumok energiája jelentősen különbözik, attól függően, hogy a csatorna direkt ütközés, Auger-folyamat, vagy autoionizáció eredménye.

Csakúgy, mint a tranziens molekulaion állapotai, a keletkező fragmentumok tulajdonságai is sokfélék lehetnek: egy vagy több atomból álló, semleges vagy töltött, ill. alap vagy gerjesztett állapotú töredékek. Léteznek többlépcsős disszociációs folyamatok is, melyekben a primer disszociációban keletkező molekulaionok a következő lépésben tovább disszociálnak [7, 10, 63]. Ilyen többlépcsős fragmentációs

folyamatokra lehet példa a kétszeresen ionizált metán és víz molekula következő szétesése:

$$CH_4^{2+} \rightarrow CH_3^{+} + H^{+} \rightarrow CH_2^{+} + H^{+} + H^0$$

$$H_2O^{2+} \rightarrow OH^{+} + H^{+} \rightarrow O^{+} + H^{+} + H^0$$
(12)

A fent leírtakból sejthető, hogy a Coulomb-robbanásból származó fragmentumok energia és szögeloszlásának mérésekor igen összetett spektrumokat kaphatunk. Ezek általános jellemzőivel foglalkozom a következő alfejezetben, a hangsúlyt a vízmolekula fragmentációs spektrumára helyezve.

2.3.7 A Coulomb-robbanásból származó kation fragmentumok energia- és szögeloszlása

A fragmentumok energiájának jellemzésére a disszociációban felszabaduló összes kinetikus energiát szoktuk használni, melyre az angol szakirodalom "kinetic energy release", röviden "*KER*" megnevezést használja. A továbbiakban én az angol kifejezés tükörfordításaként a "kinetikus energia felszabadulás", vagy az angol "*KER*" rövidítést fogom használni.

A *KER*-t alapvetően a következő energiajárulékokból építhetjük fel: a kiindulási molekulaion összenergiája (E_1), a keletkező fragmentumok összenergiái ($E_{2,1}$ és $E_{2,2}$). Az E_1 , $E_{2,1}$ és $E_{2,2}$ teljes energiák magukba foglalják az elektronenergiákat, valamint a vibrációs és rotációs energiákat. A teljes *KER* így írható:

$$KER = E_1 - (E_{2,1} + E_{2,2}) \tag{13}$$

Ezen energiajárulékok közül az E_1 , $E_{2,1}$ és $E_{2,2}$ számos diszkrét értéket vehet fel, a különböző gerjesztéseknek köszönhetően. A Coulomb-robbanási kép alapján (a továbbiakban a folyamatra az angol kifejezésből származó CE rövidítést is használni fogom) a *KER* értékére gyakran egy szemléletes képen alapuló becslés is adható. Kétatomos molekulák kétszeres ionizációja esetén például elég jól használható a *KER*≈1/*R* becslés, ahol *R* az alapállapotú molekula egyensúlyi atomtávolsága. Ez lényegében két egységnyi ponttöltés elektrosztatikus taszítását írja le. Ha mind a tranziens molekulaion, mind a fragmentumok alapállapotúak, ezzel az egyszerű modellel nemcsak a *KER* értéke becsülhető, hanem annak szórása is, a vibrációs alapállapot völgyének szélességéből. A CE kép jól számot ad arról is, hogy a tranziens molekulaion töltésének növekedésével nő a felszabaduló kinetikus energia, és ezzel az egyedi fragmentumok mérhető energiája. Fotonbombázással kiváltott fragmentációs vizsgálatukban Dujardin és munkatársai [64] úgy találták, hogy az egyszerű CE modell is jól visszaadja a fragmentumok alkotta csúcsok maximumához tartozó energiákat.

Werner és munkatársai [5] korai munkájukban, valamint Rajput és munkatársai [8, 65] a kinetikus energia felszabadulás kis szórását csupán a molekula rotációjából és vibrációjából próbálták származtatni. Pár évvel későbbi munkájukban Werner és munkatársai [56], Tarisien [66], valamint Rajput és munkatársai [8] már az elektrongerjesztések hatását is fontos tényezőként említik a fragmentumok energiaeloszlásában. Tarisien kiemeli, hogy az egyszerű CE modell nem elég hatékony a fragmentumok energiaeloszlásának kielégítő pontosságú reprodukálásához.



2.8 ábra: Egy Wolff és munkatársai [62] által, 3 MeV Li^{3+} + H_2O ütközésben mért fragmentációs spektrum (felső ábra), és az nCTMC szimuláció eredménye (alsó ábra). A megfelelő szimulált csúcsenergiákat a felső ábrán nyilakkal és a, b, c... betűkkel jelölték.

2016-os közleményükben Wolff és munkatársai [62] a H₂O molekula H⁺, Li⁰⁻³⁺, C⁺ és C²⁺ lövedékekkel kiváltott fragmentációját tanulmányozták. A CE modellt és az nCTMC módszert kombinálva a legfontosabb fragmentációs csatornákra realisztikus *KER* értékeket kaptak. Egy általuk mért fragmentációs energiaspektrumot mutat a 2.8-as ábra, melyen az elméleti úton meghatározott fragmentum energiákat függőleges vonalak, és a hozzájuk tartozó "a", "b", "c"... betűk jelzik.

Az irodalmi áttekintés azt mutatja, hogy egyik fajta gerjesztés szerepe sem elhanyagolható a fragmentációs folyamatban. A kétszeresen ionizált vízmolekula XUV sugárzással indukált fragmentációjának vizsgálatában Pedersen és munkatársai [4] kimutatták, hogy a gerjesztések járulékai igen jelentősek. Munkájukban megmutatták, hogy a fragmentációs csatornák energiaszélessége ténylegesen magyarázható a megjelenő gerjesztett állapotokkal, és ezek eloszlásával. A 2.9-es ábrán egy általuk mért *KER* eloszlást látunk az OH⁺+H⁺ csatorna esetén. A H₂O²⁺ tranziens molekulaion lehetséges vertikális gerjesztett állapotait, a keletkező OH⁺ ion várható állapotait, valamint az ezen átmenetekre elméleti úton meghatározott kinetikus energiákat az ábrán a "fésűk fogai" jelzik.



2.9 ábra: Pedersen és munkatársai által [4] mérésekben (fekete és szürke görbe), valamint a lehetséges gerjesztett állapotokból elméleti úton meghatározott KER értékek (az ábra felső részén látható "fésűk fogai") az OH^++H^+ csatornára.

Általánosan elmondható, hogy egy adott fragmentációs csatorna *KER* eloszlása függ attól, hogy a primer gerjesztett molekulaionnak és a keletkező fragmentumoknak milyen gerjesztett állapotai jelennek meg az adott ütközési rendszerben. Például, ha egy magasan gerjesztett molekulaion magasan gerjesztett állapotú fragmentumokra disszociál, a felszabadult kinetikus energia kisebb lesz, mintha ugyanez a molekulaion alacsonyan gerjesztett vagy alapállapotú fragmentumokra esik szét.

Egy adott fragmentációs eseményben felszabadult kinetikus energia a keletkező fragmentumok között megoszlik. A Coulomb-robbanásból származó fragmentumoknál

ez a megoszlás a fragmentumok tömegével fordítottan arányos [10, 63]. Ezért a felszabadult kinetikus energia nagy részét a könnyű fragmentumok (H^+ , H_2^+) viszik el míg a nehéz fragmentumok (pl.: O^{q^+} , OH^{q^+} , C^+ , $Ch_n^{q^+}$) jóval kisebb arányban részesednek a KER-ből (lásd 2.10 ábra). A fragmentumok tömegarányait alapul véve Ben-Itzhak és munkatársai [63] a CH₄ molekulán keresztül kimutatták, hogy ugyanazon KER-hez, valamint kiindulási- és végállapothoz, tartozó fragmentumok energiái különbözőek, attól függően, hogy a fragmentumok egy vagy többlépcsős disszociációban keletkeztek. Ennek megfelelően az egy és többlépcsős folyamatok jelenléte szintén hozzájárul a fragmentációs csatornák energiájának a kiszélesedéséhez, esetleg ugyanazon kezdeti és végállapottal jellemezhető esemény több átfedő csúcsot is eredményezhet az energiaspektrumban. Ilyen pl. a 2.10 ábrán az OH⁺+H⁺ csatorna.



2.10 ábra: 650 keV N^++H_2O ütközésben általunk mért fragmentációs hatáskeresztmetszet spektrum. Az ábrán jelöltem az egyes fragmentációs csatornákat is, melyek össztöltése adja a molekula ionizáltsági fokát. A ~3 eV fölötti csúcsokat protonok alkotják, a csatornához tartozó nehéz fragmentumok a spektrum elején lévő nagy (gyüjtő)csúcsban gyűlnek össze.

Ahogy azt eddig láttuk, a molekula Coulomb-robbanásában felszabadult kinetikus energiát nagyban meghatározza az ütközésben kialakult tranziens molekulaion töltése [5, 7, 56]. Kivételt képez ez alól az egyszeresen töltött molekulaion, mely ionra és semleges fragmentum(ok)ra disszociál. Mivel itt a Coulomb-taszítás sokkal gyengébb, ezen csatornákban a *KER* értéke is kicsi (általában a *KER*<3 eV) [7, 63, 67]. A tranziens molekulaion töltésének növekedésével az egyre nagyobb töltésű fragmentumok közti elektrosztatikus taszítás miatt a fragmentumok kinetikus energiája növekszik (2.10 ábra). Szűkebb értelemben csak a minimum kétszeresen ionizált molekula disszociációját nevezzük Coulomb-robbanásnak, ahol a *KER* kb. 3 és 100 eV közé esik.

Csakúgy, mint az elektronemissziónál az elektron és a lövedék között, esetenként a töltött molekulatöredékek és a lövedék között is viszonylag tartós Coulombkölcsönhatás alakul ki az ütközést követően. Ezen ütközés utáni kölcsönhatások főként lassú, nagy töltésű ion-lövedékek esetén válnak jelentőssé, melyek a kis energiájú fragmentumok energia és szögeloszlását módosítják. Pesič és munkatársai [6] a Ne^{q+} +H₂O ütközésekből származó fragmentumok energia és szögeloszlását vizsgálva úgy találták, hogy a kis energiás pozitív töltésű fragmentumok hozama hátraszögekben (a nyaláb irányával ellentétes irányban) megnövekszik, előre szögekben pedig lecsökken. Ezt az előre-hátra aszimmetriát az ütközés utáni kölcsönhatással magyarázták. Elektronoknál – ahogy azt a 2.3.3 alfejezetben bemutattam – a PCI általában előreszórásban nyilvánul meg a szabaddá vált negatív töltésű elektron és a távozó pozitív töltésű lövedék ion közti Coulomb-vonzásnak köszönhetően. A pozitív töltésű fragmentumok esetén a PCI a fragmentum és a távozó, szintén pozitív töltésű lövedék közti taszításban nyilvánul meg. Így a lövedék irányával megegyező irányba kilépő fragmentumok egy része a Coulomb-taszítás miatt az ellenkező irányba térül el, így előre szögekben kisebb, hátraszögekben pedig egy megnövekedett hozamot mérhetünk [6, 68]. Gyors, egyszeresen töltött lövedékek esetén a PCI nem okoz megfigyelhető hatást a fragmentumok szögeloszlásában.

2.3.8 Negatív töltésű fragmentumok keletkezése molekuláris ütközésekben

Ion-molekula ütközésekben a pozitív töltésű molekulatöredékeken kívül ugyan nagyságrendekkel kisebb hozammal, de negatív töltésű (anion) fragmentumok is keletkezhetnek. Ezen kis hozamú negatív ionok jelentősége abban áll, hogy a bolygók légkörében és az anyagban sugárzás hatására bekövetkező folyamatokat, valamint kémiai környezetüket lényegesen módosíthatják [69, 70]. Emellett pozitív ionokra nem jellemző reakciókban vehetnek részt mellyel pl. ionizált gázok, plazmák tulajdonságait befolyásolhatják [71, 72].
A legegyszerűbb negatív ion fragmentum a H⁻ ion. Ilyen negatív hidrogén ion fragmentumok származhatnak hidrogén tartalmú molekula céltárgyakból, vagy olyan proton-atom ütközésekből, melyben a proton lövedék két elektront vesz át céltárgytól. Hidrogén molekulaion lövedékek + semleges atom ütközésekben is keletkezhet H⁻ fragmentum pl. a következő reakciókban [73, 74]:

$$H_{2}^{+} + Ar \rightarrow (H_{2}^{0})^{*} + Ar^{+} \rightarrow H^{-} + H^{+} + Ar^{+}$$

$$H_{3}^{+} + He \rightarrow H^{+} + H^{+} + He \qquad (14)$$

Általánosan elmondható, hogy a negatív hidrogén ion keletkezés többnyire kis impulzus-átadással járó ütközésekhez, és a céltárgy speciális gerjesztéseihez köthető. Újabb vizsgálatokban kimutatták, ill. kimutattuk, hogy nagy impulzus-átadással járó, erőteljes ütközésekben is keletkezhetnek H⁻ fragmentumok. Juhász és munkatársai [75], valamint Lattouf és munkatársai [76] munkájukban igazolták, hogy a negatív hidrogén ion keletkezés molekuláris ütközésekben sokkal általánosabb jelenség, mint azt korábban gondolták. A H⁺ és H⁻ fragmentumok energia és szög szerint differenciális hatáskeresztmetszetét vizsgálva megállapítottuk, hogy a H⁺/H⁻ arány az egész általunk vizsgált szögtartományban állandó. Mind a H⁺, mind a H⁻ fragmentumok energiaeloszlására kettős Gauss struktúrát kaptunk méréseikben. Ezeket klasszikus rugalmatlan szóródási szimulációkban is reprodukálni lehetett. Mindemellett a negatív hidrogén ion keletkezése többlépcsős folyamatoknak tulajdonítható.

2.3.9 Atomi és molekuláris ütközések bonyolultabb rendszerekben

A természetben ritka közegekben lejátszódó ion-molekula ütközések elsősorban a csillagközi gázfelhőkre, és a felső légköri folyamatokra jellemzőek. Földi körülmények között az ion-atom, és ion-molekula ütközések általában valamilyen sűrűbb, gázfázisú, folyékony, vagy szilárd közegben zajlanak, melyekben a környezet hatása sem elhanyagolható. A közegben haladó töltött részecske a közeg atomjaival, és molekuláival folyamatosan kölcsönhat, mely miatt mozgási energiájából folyamatosan veszít, azaz átadja a közegnek. Az egységnyi úthosszra vonatkoztatott energiaátadást az angol "Linear Energy Transfer" kifejezésből röviden LET-nek nevezzük. Az ionbesugárzások egy speciális tulajdonsága, hogy a közegben haladva pályájuk elején a LET viszonylag alacsony, pályájuk végén az energiaátadás azonban ugrásszerűen megnő, majd nullára csökken. Ezt a csúcsot a szakirodalom Bragg-csúcsnak nevezi, melyet a 2.11 ábra szemléltet. A Bragg-csúcs alakját és viselkedését az ún. *stopping power* kifejezésén keresztül [77] értelmezhetjük, mely megadja, az *m* tömegű, *Z*

töltésű, és *V* sebességű részecske fékeződését az *N* elektronsűrűséggel, és *I* gerjesztési potenciállal jellemezhető közegben:

$$LET = -\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 Z^2 N}{mV^2} \ln(\frac{2mV^2}{I})$$
(15)

A kifejezés szerint *V* csökkenésével ez a *stopping power*-nek is nevezett mennyiség egy darabig növekszik, majd egy maximális érték után rohamosan 0-ra csökken. A kifejezés szerint a *stopping power* növekedése a *V* lövedéksebesség csökkenésének köszönhető, azaz közvetetten a kölcsönhatás idejének növekedése hozza létre.



2.11 ábra: Néhány, sugárterápiában használt sugárzástípus mélydózis görbéjének sematikus ábrája: a kék vonal a röntgensugárzás, a zöld az elektronok, a szürke a protonok, a piros vonal pedig szén ionok tipikus mélydózis görbéi. A "Relatív dózis" arányos a Δx vastagságú közegben leadott ΔE energiával, vagyis a LET-tel.

A Bragg-csúcs tulajdonságait több területen is kihasználják. Ezek egyike a ionterápia, mely az élő szervezetben kialakult daganatok kezelésének egyik módja. Itt egy testen kívüli sugárforrásból érkező nyalábbal sugározzák be a test belsejében elhelyezkedő tumort, mely során arra törekednek, hogy az egészséges szövetek minimális sugárdózist kapjanak. A lövedék típusának és sebességének helyes megválasztásával el lehet érni, hogy a Bragg-csúcs, vagyis a közegnek (szövetnek) átadott energia maximuma pontosan a tumor helyére koncentrálódjon, az odavezető

úton az egészséges szövetek pedig minimális dózist kapjanak (lásd 2.11 ábra). Így a Bragg-csúcsot kihasználva lehetővé válik, hogy célzottan csak a tumort pusztítsák el.

A bombázó ion az energiaátadáson keresztül módosítja magát a közeget: ionizálja azt, meglöki az atomjait, felszakítja a molekulák kötéseit, melyek során további, erősen reakcióképes szekunder elektronok és szabad gyökök jelennek meg az anyagban. Több kutatócsoport is vizsgálja az ionbombázás okozta DNS károsodás alapvető mechanizmusait [33, 34, 53, 78, 79], elsősorban DNS bázisok besugárzásával. A kutatások egy része rámutatott arra, hogy a sugárkárosodás szempontjából a sejt vizes környezete sem elhanyagolható. Az élő sejt anyagának 50-90%-át kitevő víz a sejtet ért sugárzás nagy hányadát nyeli el, melynek hatására a vízmolekulákból reaktív molekulatöredékek, ún. szabad gyökök keletkeznek. A szabad gyökök a sejt molekuláival tovább reagálva bonyolult biokémiai folyamatokon keresztül hatékonyan hozzájárulnak a DNS molekula károsodásához, mely a sejt halálához vezethet [80, 81]. Egy másik fontos felismerés szerint nemcsak a molekulatöredékek, hanem a besugárzás hatására, a közeg ionizációján keresztül nagy mennyiségben megjelenő szabad elektronok is károsíthatják a DNS molekulát [80, 82]. Ha ezen elektronok energiája elegendően nagy, további ionizációt, ill. molekula szétesést okozhatnak. A kis energiás elektronok (tipikusan $E_e < 1$ eV) pedig befogódhatnak semleges molekulákra, negatív töltésű átmeneti molekulaion-komplexet hozva létre, melyek bizonyos valószínűséggel spontán széteshetnek (az angol szakirodalomban ezt "dissociative electron attachment", röviden "DEA" néven emlegetik) [80, 83].

Első közelítésben azt várnánk, hogy mind az ionizációs, mind a fragmentációs hozamok a Bragg-csúcs maximumában a legnagyobbak. Montenegro és munkatársai [84] azonban a Bragg-csúcs energiatartományába eső C⁺ lövedékekkel bombázva gáz fázisú H₂O molekulákat kimutatták, hogy a fragmentációs hozam a Bragg-csúcs kisenergiás oldalán, széles tartományban közel állandó.

A jelen dolgozatban bemutatásra kerülő munkában szintén a Bragg-csúcs alacsonyenergiás oldalát vizsgáljuk. Nehézion-lövedékekkel bombáztunk víz és metán molekulákat, a 46 – 1000 keV/ate energiatartományban, jól tudva, hogy az ilyen ütközések alapkutatási jellegükön túl biológiai jelentőséggel is bírnak.

Az alapvető atomfizikai folyamatok megértésére irányuló kutatásokban az ütközési rendszert mintegy kiragadva a környezetéből, arra törekednek, hogy a zavaró hatásokat minél jobban kiküszöböljék. A sugárterápia hatékonysága, a fent leírt folyamatok, és Montenegro eredményei rámutatnak arra, hogy gyakorlati szempontból a környezet modellezése is fontos a szövetekben lezajló sugárkárosodást okozó folyamatok megértése szempontjából. Egy újabb kutatási irány éppen ezt célozza meg. Olivera és munkatársai [60] szerint például vizes közegben az ionizációt és fragmentációt a

molekuláris kölcsönhatások erősen befolyásolják. A molekulákat a környezet igyekszik "egyben tartani", valamint a töltött fragmentumok is gyorsan, még a keletkezés helyén semlegesítődnek, a gerjesztési energia pedig a közegben gyorsan szétoszlik. B. Barc és munkatársai a DNS és RNS bázisok vizes környezetének modellezésére molekulaklaszter céltárgyakon végeznek ütközéses kísérleteket [85]. Ezeket vizsgálva kimutatták [86], hogy az uracil-vízmolekula klaszterekben fotonbesugárzás hatására az uracil molekula aromás gyűrűje akár fel is nyílhat. Ezenfelül a vízmolekulák jelenléte az uracil molekulák bizonyos állapotait stabilizálhatja is a molekula hidratációján keresztül.

2.4 Ütközések elméleti leírása

Az atomi és molekuláris ütközések vizsgálatára szolgáló elméleti módszerekkel elsősorban a lövedék és céltárgy rugalmas vagy rugalmatlan szóródását, a gerjesztést és ionizációt, valamint az ionizáció során kilépő elektronok energia és szögeloszlását tudjuk hatékonyan leírni. A molekula fragmentáció általános leírásáról, tetszőleges vakanciaeloszlás esetén ma még nem beszélhetünk. Megkülönböztetünk *klasszikus* (newtoni) fizikán alapuló, *félklasszikus*, és tisztán *kvantummechanikai* módszereket. A vizsgált rendszer bonyolultságától függően, mindhárom leírásmód esetén többnyire közelítésekkel kell élnünk. Az atomi ütközésekhez képest a molekulák ütközései jóval bonyolultabb tárgyalásmódot igényelnek. Nemcsak az atomi elektronpályákat kell molekulapályákkal helyettesítenünk, hanem követnünk kell a magok mozgását is. A vibrációs és rotációs állapotok figyelembe vételének módja ütközésekben szintén nem nyilvánvaló. Az atomi ütközésekkel kombinálódnak.

2.4.1 A klasszikus pályájú Monte-Carlo módszer (CTMC)

Az atomi ütközések leírására két, nagyon különböző bonyolultsági szintű klasszikus módszert fejlesztettek ki. Már a kezdeteknél kidolgozták a *klasszikus kéttest ütközés* közelítést, melynek segítségével a lövedék és céltárgy (elektron), mint két szabad részecske Coulomb-kölcsönhatását írható le [19, 27]. Ennek keretében azt a tényt, hogy az elektron az atomban kötött állapotban van, egy kezdeti sebességeloszlás függvénnyel veszik figyelembe. A kéttest ütközés közelítés sok esetben jól visszaadja a teljes ionizációs hatáskeresztmetszetet.



2.12 ábra: Az ütközési geometria sematikus ábrája Descartes koordináta rendszerben. Az ábrán "L" a lövedéket, "T" a céltárgyat (target), "e" pedig az aktív elektront jelöli. \mathbf{r}_1 , \mathbf{r}_2 , és \mathbf{r}_3 a hely, **A**, **B**, **C** pedig a három részecske relatív helyzetvektora. A lövedék z tengely irányú \mathbf{v}_L sebességgel egyenes vonalon, b távolságban (ütközési paraméter) halad el a céltárgy tömegközéppontja (TKP) mellett.

A legtöbb atomi és molekuláris ütközés azonban többtest probléma, amely gyakran visszavezethető háromtest problémára. Ennek megoldására fejlesztették ki a klasszikus pályájú Monte-Carlo (CTMC) módszert [87, 39, 50, 88]. Itt az atomi ütközésekben részt vevő 3 aktív részecske – a lövedékion, a céltárgy atommag és az aktív elektron – mozgását a klasszikus fizika módszereivel, numerikusan oldják meg. A lövedéket és a céltárgy elektront véletlenszerűen választott fázistérbeli pontokból indítjuk, figyelembe véve az adott atomra vagy molekulára jellemző térbeli elektroneloszlást. Az aktív elektront az atommag Coulomb-terében ellipszis pályán mozgó klasszikus részecskének tekintjük. A lövedék-céltárgy atommag, valamint a lövedék-aktív elektron kölcsönhatást Coulomb-potenciállal, vagv valamilven centrális modellpotenciállal vesszük figyelembe. Ezen háromtest rendszerre – melyet sematikusan a 2.12 ábra mutat – oldjuk meg numerikusan a Newton egyenleteket, mely lényegében az $A=r_2-r_3$, $B=r_3-r_1$, és $C=r_1-r_2$ relatív helyzetvektorok időfejlődésének nyomon követését jelenti.

Az eljárást egymás után sokszor (pl. 10⁸-szor) megismételve mintegy elméleti kísérletet végzünk. Az ütközés utáni szakaszon a részecskepályákat megvizsgálva ún. kimeneti tesztekkel meg lehet állapítani az ütközésben részt vevő minden egyes részecske végállapotát, melyből a gerjesztés, ionizáció, elektronbefogás valószínűségei megkaphatók. A kétszeresen differenciális hatáskeresztmetszetet a következő kifejezés adja [89]:

$$\frac{d^2\sigma}{dE\,d\,\Omega} = n\,2\,\pi\int_0^\infty b\,\frac{d^2\,p}{dE\,d\,\Omega}(b)db \approx \frac{n\,2\,\pi\,b_{max}\sum_j b_j}{N_{tot}\Delta\,E\,\Delta\Omega} \quad , \tag{16}$$

ahol *b* ütközési paraméter (lásd 2.12 ábra), *b*_j a j-edik pályaszámolásnak megfelelő ütközési paraméter a [0, *b*_{max}] intervallumban, $\frac{d^2 \sigma}{dE d \Omega}$ a kétszeresen differenciális ionizációs valószínűség egy elektronra vonatkozóan, *N*_{tot} pedig az összes ütközés száma.

A háromtest probléma még a CTMC módszerrel is csak a hidrogén atomra oldható meg egzaktul. Többelektronos atomokat vagy molekulákat, ha a klasszikus képben kezelünk, azok nem stabilak, az elektronok egymás közötti Coulomb-kölcsönhatása miatt spontán ionizálódnak. Ezért az elektron-elektron kölcsönhatásra a következő egyszerűsítést kell tennünk: az ütközésben csak egyetlen aktív elektron játszik szerepet, míg a többi "befagyasztva", az atommag Coulomb terét árnyékolja le. A CTMC módszert L. Sarkadi nemrégiben kiterjesztette molekuláris ütközések leírására is. A módszert sikerrel alkalmazta H^++CH_4 , He^++CH_4 , N^++H_2O [89] valamint $H^++C_4H_4N_2O_2$ (uracil) [90] ütközésekben a molekuláris ionizációból származó kétszeresen differenciális elektronemissziós hatáskeresztmetszetek meghatározására.

2.4.2 Félklasszikus közelítés (SCA)

Az atomi ütközések leírására létezik olyan módszer, mely átmenetet képez a klasszikus és tisztán kvantummechanikai megközelítések között. Ez a félklasszikus közelítés, melyben a nehéz részecskék mozgását a klasszikus fizika törvényeivel írjuk le, a könnyű elektronokat pedig a kvantummechanika módszereivel kezeljük [19, 27, 91].

A módszer a következő három alapfeltevésre épül [92]:

1. A lövedék ponttöltés, mely egyenes vonalú, vagy hiperbola pályán mozog.

- 2. Függetlenrészecske-modellt használunk. Ez azt jelenti, hogy egyetlen aktív elektronunk van, melynél az atomon belüli elektron-elektron kölcsönhatástól is eltekintünk, vagy a többi elektron hatását egy átlagtérrel vesszük figyelembe.
- 3. Az atomi elektronhéj állapotának időbeli fejlődését kvantummechanikai módszerekkel tárgyaljuk.

A céltárgyban a lövedék által létrehozott változásokat az időfüggő Schrödinger egyenlettel írjuk le:

$$[H_{0}+V(t)]\Psi(\mathbf{r},t)=i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r},t) , \qquad (17)$$

ahol H_0 az atom perturbálatlan Hamilton operátora, V(t) pedig az atomi elektron potenciális energiája a lövedék időben változó terében.

Az SCA módszer lehetővé teszi a szórási folyamat differenciális tárgyalásmódját, melyben az E_i kezdeti energiaállapotból az E_f végállapotba való átmenet a *b* ütközési paraméter függvénye. Adott *b* ütközési paraméter mellett az n_i , l_i , j_i , m_i kvantumszámokkal jellemzett alhéj ionizációs hatáskeresztmetszetét a következő kifejezés (átmeneti mátrixelem abszolút érték négyzete) adja [19]:

$$\frac{\mathrm{d}I_{b}}{\mathrm{d}E_{f}} = Z^{2} \sum_{j_{f}} \sum_{m_{f}} \sum_{f_{f}} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{e}^{i\omega_{f}t} \langle E_{f}, j_{f}, m_{f}, \left\langle \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_{b}(t)|} \right\rangle n_{i}, j_{i}, m_{i} \rangle \,\mathrm{d}t \right|^{2} , \qquad (18)$$

ahol I_b a b ütközési paramétertől függő ionizációs valószínűség, E_f és E_i a végállapot és kezdeti állapot energiái, $\omega_{fi}=E_f-E_i$, Z a lövedék rendszáma, \mathbf{r} és \mathbf{R}_b az elektron és a lövedék helyvektorai, j_f , j_i , és m_f , m_i pedig a megfelelő impulzusmomentumok vég- és kezdőállapotai.

Ebből az energia szerint differenciális hatáskeresztmetszet a következőképpen számolható:

$$\frac{\mathrm{d}\,\sigma}{\mathrm{d}\,E_f} = 2\,\pi\int_0^\infty b\,\frac{\mathrm{d}\,I_b}{\mathrm{d}\,E_f}\,\mathrm{d}\,b \tag{19}$$

2.4.3 Síkhullámú Born-közelítés (PWBA)

A rugalmatlan szórás leírásakor mindig egy szórási mátrixot kell kiszámolnunk. A mátrixelemeket (T_{fi}) megfelelően sorba fejtve megkaphatjuk annak Born-sorát.

Amennyiben ennek a sornak csak az első tagját használjuk az átmenet kiszámításához az *elsőrendű Born-közelítéshez* (angolul *Plane Wave Born-Approximation*, röviden *PWBA*, vagy *B1*) jutunk [92]. A mátrixelemet a következő formában írhatjuk:

$$T_{fi}^{PWBA} = \langle \phi_f | V | \phi_i \rangle = \left\langle e^{i k_f r} \phi_f(\mathbf{r}_1 \dots \mathbf{r}_N) \left| \frac{Z_1 Z_2}{|\mathbf{r}|} - Z_1 \sum_{j=1}^N \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|} \right| \phi_i(\mathbf{r}_1 \dots \mathbf{r}_N) e^{i k_i r} \right\rangle \quad , \qquad (20)$$

ahol i és f indexek a kezdő és végállapotokat jelzik, **k** a hullámszám vektor, Z_1 a csupasz lövedék iontöltése, Z_2 a céltárgy rendszáma, **r** a magok közti távolság, *N* a céltárgy elektronok száma (*N*=*Z*₂), **r**_j pedig a j-edik elektron helyvektora.

A Born-közelítésben is a függetlenrészecske-modellt használva a beeső és a kimenő lövedék ion mozgását is síkhullámmal írjuk le. Ez azt jelenti, hogy a lövedék pályáját egyenes vonalúnak tekintjük, ami gyors lövedékek esetén helytálló közelítés.

A módszer fontos tulajdonsága, hogy a (20) kifejezésben $Z_1Z_2/|\mathbf{r}|$ tag az állapotok ortogonalitása miatt automatikusan nullát fog adni. Ez azt jelenti hogy az (első) Bornközelítés a lövedéknek csak a céltárgy elektronokon való szóródását írja le, a mag-mag kölcsönhatást figyelmen kívül hagyja. A független részecske közelítés miatt pedig akkor adja a legjobb közelítő eredményt, ha az elektronok mozgásának meghatározásában a mag Coulomb-potenciálja dominál. Ez belső héj elektronok esetén teljesül a legjobban. Érdemes még megemlíteni, hogy a PWBA a többszörös céltárgy ionizáció leírására nem alkalmas.

2.4.4 Magasabbrendű folyamatokat részben tartalmazó kvantummechanikai módszerek

Az előző alfejezetben bemutatott PWBA módszerben a lövedék pályájának a céltárgy Coulomb-terében történő elhajlását nem vesszük figyelembe. Ezt a hiányosságot küszöböli ki a *torzított hullámú Born-közelítés* (angolul *distorted* wave *Born-approximation*, vagy *DWBA*), melyben a bemenő lövedék iont síkhullámként, a kimenőt pedig egy torzított hullámmal írják le.

A DWBA továbbfejlesztett változata a *folytonos torzított hullámú* (Continuum Distorted Wave, vagy CDW) közelítés [27, 93, 94]. Itt már a lövedék pályájának elhajlása mellet figyelembe veszik a következő két tényt is:

1. A lövedék és a céltárgy már az ütközés pillanata előtt is kölcsönhatnak egymással.

 Az ionizáció következtében a céltárgyból kilépő elektron az ütközés után is a távozó lövedék és a visszamaradt céltárgy ion közös terében mozog. Ez a jelenség a fenti fejezetekben ütközés utáni kölcsönhatás (PCI) néven szerepel.

Az ütközés előtti (χ_i) és utáni (χ_f) torzított hullámfüggvények a következőképpen írhatók:

$$\chi_{i}^{CDW, *} = \Phi_{i}^{B} L_{i}^{*}(\mathbf{s}) = \Phi_{i}^{B} N^{*}(\mathbf{v}) {}_{1} F_{1}(i \mathbf{v}; 1; i(\mathbf{vs} + \mathbf{v} \cdot \mathbf{s})) \quad , \qquad (21)$$

$$\chi_f^{CDW,-} = \Phi_f^B L_i^-(\boldsymbol{s}) = \Phi_f^B N(\zeta) {}_1 F_1(-i\zeta; 1; -i(p\boldsymbol{s} + \boldsymbol{p} \cdot \boldsymbol{s})) \quad ,$$
(22)

ahol $N^*(v)$ és N(ζ) normalizációs faktorok, ${}_1F_1$ az elfajult hipergeometrikus függvény. A W_i és W_f kezdeti és végállapothoz tartozó perturbációs potenciálokat pedig a következő kifejezések adják meg:

$$(H-E)\chi_i^{CDW,+} = W_i\chi_i^{CDW,+} = \Phi_i^B [\nabla_x \ln(\varphi_i(\mathbf{x})) \cdot \nabla_s L_i^+(\mathbf{s})] \quad , \tag{23}$$

$$(H-E)\chi_{f}^{CDW,-} = W_{f}\chi_{f}^{CDW,-} = \Phi_{f}^{B} [\nabla_{x} \ln_{1}F_{1}(-i\xi;1;-i(kx+k\cdot x))\cdot\nabla_{s}L_{f}^{-}(s)] \quad .$$
(24)

A CDW elmélet kielégítően reprodukálja a gyors ion-atom és ion-molekula ütközésekben mért elektronemissziós spektrumokat, beleértve a kis energiás elektronemisszió anizotrópiáját, az ECC és BE csúcsokat is [36].

A CDW eredmények mérésekkel való összehasonlítása rámutat az elmélet hiányosságaira is: kis és közepes lövedéksebességeknél a számított hatáskeresztmetszet értékek szisztematikusan túlbecsülik a mérési eredményeket. Ez a viselkedés az ütközés előtti hullámfüggvény (χ_i) nem megfelelő normálására vezethető vissza. Ezen problémát a *folytonos torzított hullámú közelítés - eikonal kezdeti állapotokkal* (*Continuum Distorted Wave - Eikonal Initial States, CDW-EIS*) [95, 96] nevű módszerben küszöbölik ki oly módon, hogy a CDW-ben használt ütközés előtti hullámfüggvényt (21) a következővel helyettesítik:

$$\chi_i^{EIS,+} = \Phi_i^B L_i^{EIS,+}(\mathbf{s}) = \Phi_i^B e^{-i\frac{Z_p}{v}\ln(vs+v\cdot s)} \quad .$$
⁽²⁵⁾

A kimenő torzított hullámot (χ_f) pedig változatlanul, a CDW módszerben megadott módon a (22) kifejezés szerint írják le.

A CDW-EIS módszer viszonylag széles lövedékenergia-tartományban kielégítő pontossággal adja vissza a csupasz lövedékekkel mért kétszeresen differenciális

elektronemissziós hatáskeresztmetszeteket. Gulyás és munkatársai [97, 98] a módszert sikeresen alkalmazták molekula céltárgyakra, H⁺+CH₄ és H⁺+H₂O ütközésekben a többszörösen differenciális elektronemissziós spektrum leírására. Törekvések vannak bonyolultabb, pl. uracil molekula ionizációjának CDW-EIS módszerrel történő leírására is [99].

2.4.5 Többszörös Coulomb-ionizáció

A munkámban vizsgált ütközési rendszereknél, illetve a molekulák Coulombrobbanásában a többszörös ionizációval járó eseményeknek kiemelt szerepük van. Ugyan a többszörös ionizáció valószínűsége messze alatta marad az egyszeres ionizációénak a legtöbb disszociációs eseményért ezek tehetők felelőssé.

Mivel a többszörös ionizáció kvantummechanikai leírása bonyolult, és a számítási időt is jelentősen megnöveli, így az elméleti módszerek többségében statisztikus módon közelítik meg a problémát. A közelítésben az egyes ionizációs eseményeket egymástól függetlennek, és azonos valószínűségűnek tekintik. Az ilyen események valószínűségi leírására a binomiális eloszlás használható. Egy adott héj n-szeres ionizációja az alábbi módon írható [100]:

$$P_n = \binom{N}{n} P^n (1-P)^{n-N} \quad , \tag{26}$$

ahol N a héjon levő elektronok száma, P pedig az ionizációs valószínűség.

Amennyiben az ionizáció K és L különböző héjakon következik be, melyeken $N_{\rm K}$ és $N_{\rm L}$ db elektron található, annak valószínűsége, hogy rajtuk *k* és *l* darab vakancia képződik a következő:

$$P_{kl} = \binom{N_{K}}{k} P_{K}^{k} (1 - P_{K})^{N_{K} - k} \binom{N_{L}}{l} P_{L}^{l} (1 - P_{L})^{N_{L} - l}$$
(27)

Többszörösen ionizált állapot létrejöhet egyszeres ionizációt követő Augerfolyamat, vagy autoionizáció eredményeként is.

2.4.6 Árnyékolt Coulomb potenciál

A 2.3.3 alfejezetben vázlatosan bemutattam, hogy a lövedék elektronjainak magtöltést árnyékoló tulajdonsága hogyan módosíthatja az elektronemissziós

hatáskeresztmetszetet. Az elektronok ilyen árnyékoló hatását az elméletekben valamilyen árnyékolási modellel veszik figyelembe [27, 101], melyekben a csupasznak gondolt Z_P magtöltéssel rendelkező lövedék Coulomb-potenciáljának magtól vett távolságfüggvényét módosítják egy árnyékolási függvénnyel ($S_P(r_{eff})$):

$$Z_{\mathrm{Peff}} = Z_{\mathrm{P}} - S_{\mathrm{P}}(r_{\mathrm{eff}}) \tag{28}$$

Az árnyékolási függvény, mely megadja az R sugáron belül eső elektrontöltés "összegét" a következőképpen írható:

$$S_{\rm P}(r) = \sum_{nl} N_{nl} \int_{0}^{r} d\rho \, \rho^{2} R_{nl}^{2}(\rho)$$
(29)

Ahol N_{nl} az nl pályán levő elektronok száma (maximum 2(2*l*+1)), R_{nl} pedig az ugyanezen pályához tartozó, ún. radiális hullámfüggvény [11].



2.13 ábra: Az N^{\dagger} árnyékolt (piros görbe), és a H^{\dagger} csupasz (kék görbe) lövedék Z_{eff} effektív töltése (**a**), és az ebből számított $V=Z_{eff}/r$ Coulomb-potenciálja (**b**) az atommagtól vett távolság függvényében. Az N^{\dagger} lövedék effektív töltését, és árnyékolt potenciálját a V^{GSZ} modell alapján számoltuk.

A jelen munkában felhasznált elméleti eredmények mindegyike az úgynevezett *Green-Sellin-Zachor* (V^{GSZ}) árnyékolási potenciál [102] felhasználásával született, melyet egy rövid és egy hosszú hatótávolságú potenciál összegeként írhatunk:

$$V^{GSZ}(r) = \frac{-Z - (N-1)}{r} - \frac{(N-1)}{r} \Omega(r, \eta, \xi)$$
(30)

A kifejezésben *Z* a magtöltés, *N* az elektronok száma, Ω pedig a következőképpen írható:

$$\Omega(r,\eta,\xi) = \left[(\eta\xi)\left[e^{\xi r} - 1\right] + 1\right]^{-1}$$
(31)

Ahol η és ξ *N*-től és *Z*-től függő paraméterek.

 V^{GSZ} árnyékolási potenciált alkalmazva az N⁺ lövedék effektív töltésének és potenciális energiájának távolság függését ($Z_{eff}(r)$ és V(r)) mutatja a 2.13 ábra, összehasonlítva a H⁺ ion hasonló görbéivel.

2.4.7 A molekula fragmentáció elméleti leírásának alapjai

A molekula fragmentáció elméleti módszerekkel történő leírására több, igen összetett módszert fejlesztettek ki [103, 104, 105]. Különösen a gerjesztési járulékok figyelembe vétele jelent nehézséget. Ezért – a jórészt *ab-initio* kvantummechanikai módszerek többségében – mind a kiindulási molekulaionnak, mind a keletkező töredékeknek csupán az alapállapotát vagy legalacsonyabb gerjesztett állapotát veszik figyelembe. A rotációs és vibrációs járulékokat is többnyire elhanyagolják, és a KER-t csak az elektronenergiákra alapozva közelítik.

A fragmentációs csatornák rotációs és vibrációs állapotaira átlagolt *KER* értékeinek a meghatározására alkalmazzák a teljes entalpiák különbségén alapuló módszert [103]. A kiindulási molekulaion energiáját, és az ehhez tartozó molekulageometriát kvantummechanikai módszerekkel határozzák meg. A molekulák szétesésében nagy szerepe van az elektronkorrelációnak. Ezért a Hartree-Fock módszert, mely az elektron-elektron kölcsönhatást csak gyengén veszi figyelembe, csak kis molekulákra alkalmazzák, vagy nagyobb molekuláknál a geometria gyors optimalizálását végzik vele. Általánosan, nagyobb molekulák esetén az elektronkorrelációt pontosabban figyelembe vevő sűrűségfunkcionál módszert (DFT), csatolt klaszter, vagy a konfigurációs kölcsönhatás módszert használják a kezdeti és végállapotok kiszámítására. A tranziens molekula létrejötte során Frank-Condon átmenetet, az ezt követő időfejlődés leírására adiabatikus átmenetet feltételeznek. A felszabadult kinetikus energiát (*KER*) pedig a molekulaion kezdeti állapotának, és a keletkező fragmentumok végállapotainak energiakülönbsége adja.

A fragmentációs csatornák hozamainak elméleti leírására jelenleg több irányban is tapogatóznak, de kiforrott elméletről még nem beszélhetünk. A modellek egy része a molekulák szétesését statisztikus úton közelíti. Ilyen az M3C [104], vagy az osztályunkon Juhász Zoltán által kifejlesztett termodinamikai modell [106]. Ez utóbbi például az ütközésben résztvevő magokat klasszikus tömegpontként kezeli. A kötött elektronok állapotait a magok terének függvényében a kvantummechanikai leírásnak megfelelően kezeli, de betöltöttségi valószínűségeikre egyszerű statisztikai becslést ad. Az ütközés során a lövedékből és céltárgyból létrejövő kvázi-molekula elektronikus energiaszintiei a modellben hőmérsékleti eloszlást követnek. Ez az állapotok magmozgások miatti erős csatolódásának, az ütközési rendszer adiabatikus összenyomódásának és felmelegedésének köszönhető. A nagy számú lehetséges gerjesztett állapot betöltöttségi valószínűségét a Boltzmann-faktor $e^{-(E/kT)}$ adia meg. ami nagymértékű egyszerűsítést jelent a csatolt csatornás számításokhoz képest. Az ütközés után pedig a kvázi-molekula elektronállapotainak disszociációs limitje határozza meg, hogy a széteső molekula atomjai milyen gerjesztett és ionizációs állapotban lesznek. A modell diszkretizált szabad elektron állapotok számításba vételével az elektronemissziót is leírja.

3. Kísérleti berendezések és módszerek

A fejezetben bemutatom a méréseinkben használt kísérleti berendezéseket, és alkalmazott módszereket. A GANIL intézetben végzett vizsgálatok, és a mérőrendszer fejlesztése egy magyar-francia együttműködés keretében zajlott, mely egy nagyobb csapat közös munkájának az eredménye. Ezért francia együttműködőink mérőrendszerét csak vázlatosan ismertetem, helyette a hangsúlyt az Atomkiban található kísérleti elrendezés bemutatására helyezem.

3.1 Gerjesztő források

3.1.1 Az Atomki 5 MV-os Van de Graaff részecskegyorsítója

A *Van de Graaff (VdG) részecskegyorsító* az elektrosztatikus gyorsítók családjába tartozik, melyek az ionforrásban keltett ionokat sztatikus elektromos térrel gyorsítják.



3.14 ábra: A Van de Graaff gyorsító sematikus ábrája. Magyarázata a szövegben található.

A VdG generátorban a több millió voltos gyorsítófeszültséget a következő módon hozzák létre [107, 108]: Két darab motorral meghajtott hengeren szigetelő selyem, vagy gumiszalagot hajtanak körbe, melyekre egy elektródával (C1) töltést visznek fel. A szalag a töltést a C2 elektródához szállítja melyen keresztül a töltések a nagyfeszültségű, szigetelt elektródára kerülnek. A nagyfeszültségű elektróda feszültségét (vagyis a gyorsítófeszültséget) egy ahhoz közelíthető, vagy attól távolítható elektródával szabályozzák. Az átütési szilárdság növelésére a gyorsítócsövet általában egy zárt tartállyal veszik körül, melyet jól szigetelő, száraz N₂ és CO₂ gázkeverékkel töltenek fel. A VdG generátor sematikus rajza a 3.14 ábrán látható.

Az Atomkiban két Van de Graaff generátor üzemel, a VdG-1 és a VdG-5. Az ionokat mindkét gyorsító ionforrásában rádiófrekvenciás gerjesztéssel állítják elő, melyeket a kivonó elektródán keresztül a gyorsítócsőbe juttatnak. Ebben az ionok a nagyfeszültségű elektródától a gyorsítócső másik végén levő földpotenciál felé gyorsulva mozognak. A felgyorsított ionok sokaságából a megfelelő energiájú, töltésállapotú, és fajtájú ionokat az analizáló mágnessel választják ki, mely egyben függőleges irányból vízszintesbe téríti el az analizált ionnyalábot. Az 5 MV-os VdG-5 gyorsító öt nyalábcsatornával rendelkezik, melynek egyik nyalábvégénél található a mi mérőrendszerünk. A nyaláb további vezetése, pozicionálása és formázása mágneses kvadrupól lencsékkel történik.

A VdG-5 energiastabilitása <1 keV. A berendezés a következő, egyszeresen pozitív töltésű ionokból képes nyalábot előállítani: H⁺, D⁺, He⁺, C⁺, N⁺, O⁺, Ne⁺. Az elmúlt évben sikerült a kínálatot N₂⁺ molekulaion nyalábbal is bővíteni, melynek maximális nyalábárama ~40 nA volt.

A VdG-5 részecskegyorsító fenti ionválasztékából az 1 MeV H^+ , 1 MeV He^+ és 650 keV N^+ lövedékeket használtuk méréseinkben.

3.1.2 ECRIS a GANIL intézetben

Az elektron ciklotron rezonanciás ionforrásoknak (Electron Cyclotron Resonance Ion Source, ECRIS) két felhasználási területe létezik: 1) elterjedten használják őket nagy részecskegyorsítók ionforrásaként; 2) önállóan is üzemeltethetők, mint kis energiás részecskegyorsítók.

Az ECRIS felépítése és működési elve – melyet a 3.15 ábra szemléltet – a következő [109, 110]: A plazmakamrába (a 3.15 ábrán PK jelöléssel) kis nyomású gázt, vagy gázkeveréket juttatnak be finoman állítható tűszelepeken (T) keresztül.

Mikrohullámú (14,5 GHz) teljesítmény betáplálásával (W) a gázkeverékből plazmát állítanak elő, mely atomok, ionok, molekulák, molekulaionok, molekulafragmentumok és elektronok keveréke. Ezt a plazmát a plazmakamra körül elhelyezett állandó- (M) és elektromágnesekkel (EM) csapdába ejtjük úgy, hogy az ionoknak a plazmakamra falával történő ütközése miatti rekombinációt kiküszöböljük. A mágneses tér másik fontos szerepe, hogy a szabad elektronokat a *B* mágneses tér a Lorenz-erő hatására kör, vagy helikális pályára kényszeríti (ciklotron mozgás). Ezek az elektronok a gáz további ionizációját okozzák a többi alkotóval történő sorozatos ütközéseiken keresztül. A plazmakamrából a kivonó elektródára (E) adott, megfelelő feszültséggel ionok vonhatók ki, melyből analizálással és formázással ionnyaláb állítható elő.

EM EM 3.15 ábra: Az ECRIS sematikus PK ábrája. Α plazmát а PK plazmakamrában, a T szelepen beáramló gázból, W mikrohullámú M teljesítmény betáplálásával állítják ionok elő. Az M és EM mágnesek plazma csapdázzák a plazmát a kamrában, melyből az ionokat az E kivonó M F elektródára adott feszültséggel vonják ki.

Az ECRIS gyakorlatilag a periódusos rendszer összes eleméből képes plazmát előállítani. Kis és nagy töltésű (akár Xe⁴⁴⁺), vagy teljesen lefosztott ionokból (Ne¹⁰⁺), és kis töltésű molekulaionokból (OH⁺) is atomfizikai kísérletekhez alkalmas ionnyalábot hozhatunk létre általuk. Utógyorsítás nélkül viszont az ionok energiáját a kivonó elektróda feszültsége határozza meg, mellyel a maximális ionenergia általában néhányszor 10 keV.

3.2 Spektrométerek

A mikrorészecskék valamely tulajdonság (pl. energia, tömeg) szerinti eloszlását *spektrumnak*, az ezek mérésére szolgáló berendezéseket *spektrométereknek* nevezzük. Mivel a dolgozatban szereplő töltött részecske spektrumokat elektrosztatikus spektrométerekkel mértük, a következőkben röviden áttekintem ezek típusait. Két külön alfejezetben bemutatom az Atomkiban kifejlesztett párhuzamos lemezpár analizátorral rendelkező spektrométert, valamint a GANIL intézetben használt spektrométert.

Az *elektrosztatikus spektrométerek* működését az a fizikai megfigyelés alapozza meg, hogy a töltött részecskék mind elektrosztatikus, mind mágneses térben eltérülnek a Lorentz-erő hatására:

$$\mathbf{F}_{\text{Lorenz}} = q \, \mathbf{E} + q \left(\mathbf{v} \times \mathbf{B} \right) \tag{32}$$

Ahol q a töltés, **E**, **v**, és **B** pedig sorban az elektrosztatikus térerősség, a sebesség, és a mágneses indukció vektorok.

Az elektrosztatikus spektrométerek három alapvető típusát különböztetjük meg [111]:

- 1. Az *eltérítő típusú* spektrométerekben a részecskék pályája az ekvipotenciális felületekkel (közel) párhuzamos.
- A tükör típusú spektrométerekben a fékező potenciállal rendelkező elektróda a töltött részecskéket visszafordítja, tükrözi. További csoportosításuk az analizátor alakja alapján történik. Megkülönböztetünk síktükör, hengertükör, és félgömb analizátorokat.
- 3. A *fékező típusú* spektrométerekben a töltött részecskék egy fékező potenciál ellenében mozognak. Csak azon részecskék érik el a detektort, melyek kinetikus energiája elegendően nagy ahhoz, hogy ezt a potenciálgátat legyőzzék.

Elektrosztatikus teret használnak ugyan a *repülési idő spektrométerekben* (angolul "time of flight", röviden TOF) is, ezeket mégsem soroljuk az elektrosztatikus spektrométerek közé. Itt ugyanis a részecskék energia analizálása nem az elektrosztatikus térben való eltérülés alapján, hanem a repülési idő pontos mérésén keresztül történik. A mért repülési idő spektrum minőségét (pl. energiafeloldás – lásd lentebb) a következők határozzák meg: az elektronika gyorsasága és pontossága, a repülési út hossza, és a ütközési zóna (a gáznyalábból az azt keresztező ionnyaláb által kimetszett rész) kiterjedése. Az elektrosztatikus spektrométerek legfontosabb jellemzői a következők:

- A spektrométerkonstans (k), mely az elektródára adott feszültség és a töltött részecske kinetikus energiájának hányadosa: k=U/E
- A relatív energiafeloldás (R) megmutatja, hogy egy kiválasztott energiaérték (*E*) esetén mekkora az energiaablak (Δ*E*), melyen belül az analizált töltött részecskék elérik a detektort. *R* értéke függ az analizátor belépő (S₁) és kilépő résének (S₂) a nagyságától, a spektrométer lineáris nagyításától (M) és lineáris diszperziójától (D), valamint a leképezési hibáktól (H):

$$R = \frac{\Delta E}{E} = \frac{MS_1 + S_2 + H}{2D}$$
(33)

- A transzmisszió (*T*) a detektort elérő, és a forrásból kiinduló részecskeáram hányadosa.
- Spektrométerfüggvény: a detektált részecskék számának eloszlása az elektródára adott feszültség függvényében, monoenergiás nyalábot feltételezve.
- A spektrométer befogadó térszöge (ΔΩ) a 4π térszögnek azon része melyen belül az egy pontból kiinduló részecskék a kollimátorokon és réseken keresztül egyenes vonalú pályán bejutnak az analizátorba.

3.2.1 Az Atomkiban kifejlesztett párhuzamos lemezpár spektrométer

Az Atomkiban kifejlesztett, és a méréseinkben használt kompakt, *energia diszperzív elektrosztatikus spektrométer* egy *síktükör analizátorral* (párhuzamos lemezpár) [112] rendelkezik. Ezen spektrométer megtervezésénél nem a minél jobb energiafeloldás elérése volt a fő cél, hanem egy kompakt, elektron- és ionspektrumok gyors felvételére szolgáló, elfogadható feloldású eszközt akartunk készíteni. A spektrométer felépítése sematikusan a 3.16 ábrán látható, melyről annak lényeges paraméterei is leolvashatók.

Működési elve a következő: Az ütközési zónából az adott irányba kirepülő töltött részecskék a C1 résen keresztül belépnek a spektrométerbe. Az analizátor belépő rése (S₁) felé haladva a részecskék keresztülhaladnak a C2 és K kollimátorokon. C2, K és S₁ rések meghatározzák a spektrométer befogadó térszögét ($\Delta \Omega$). Az analizátorba (melyen U és G lemezegyüttest értjük) belépve a töltött részecskék az U lemezre adott taszító feszültség miatt parabola pályára kényszerülnek. Adott feszültség és térerősség mellett csak azok a részecskék jutnak át az analizátor kilépő résén (S₂), melyek kinetikus energiája az $E_k \pm \Delta E_k$ intervallumba esik. E_k az adott analizátor feszültségnek megfelelő nominális energia (a 3.16 ábrán zöld nyíllal jelölve). Az $E_k \pm \Delta E_k$ energiaintervallumot az energiafeloldás (33)-as kifejezése adja meg. Azok a töltött részecskék, melyek energiája kívül esik az energiaablakon a lemezekbe ütköznek (a 3.16 ábrán piros és kék nyíllal jelölve), így nem jutnak el a detektorig.



3.16 ábra: A párhuzamos lemezpár spektrométer nem méretarányos, sematikus rajza. A jelölések és a működés magyarázata a szövegben található.

Az analizátorból S2 résen kilépő részecskék mielőtt elérik a CH csatorna elektronsokszorozó detektort, áthaladnak a B_v elektródán, és az R rácson. Előbbivel az analizált nyaláb további tisztítása valósítható meg, elsősorban a szóródott töltött részecskéktől, amennyiben kis pozitív vagy negatív feszültséget kapcsolunk rá. Utóbbi pedig a térlezárást végzi.

A csatorna elektronsokszorozó által adott impulzusokból erősítés (az ábrán M1 és M2) után a D diszkriminátor válogatja ki azokat a hasznos jeleket, melyek jelnagysága meghaladja a beállított diszkriminátor szintet. Az impulzusokat ezután egy Atomkiban gyártott sokcsatornás adatgyűjtő egység (DAQ) dolgozza fel. Az adatok eltárolása számítógéppel (PC) történik.

üzemmódban Méréseinkben а spektrométert két üzemeltettük: 1) Elektronspektrumok méréséhez a G lemezt földpotenciálon tartottuk, miközben az U lemezre adott negatív feszültséget léptettük logaritmikus lépésközzel a 0-(-1200) V tartományban (ez а 0.6-os spektrométerkonstans alapján a 0-2000 eV energiatartománynak felel meg), és közben mértük a csatorna elektronsokszorozóba beérkező részecskék számát. Annak érdekében, hogy pozitív ionok ne érjék el a detektort, a csatorna elektronsokszorozó bemenetére +100 V pozitív feszültséget kapcsoltunk. A B_v elektródra adott feszültséget együtt léptettük az U elektróda feszültségével. 2) Ionspektrumok felvételekor U elektródán pozitív feszültséget léptettünk, szintén logaritmikus lépésközzel 0 -tól +120 V-ig (0-200 eV energiatartomány), és szintén mértük a csatorna elektronsokszorozóba beérkező részecskék számát. A Bv elektródát összekötöttük a csatorna elektronsokszorozó bemenetével, és -1 kV feszültséget kapcsoltunk rá, mely megakadályozta, hogy elektronok érjék el a detektort.

Az alfejezetben bemutatott spektrométer speciális, ék alakjának köszönhetően (lásd 3.18 ábra a 3.3 alfejezetben) azzal a nyalábirányhoz képest akár 15°-ban is felvehetünk spektrumokat. A töltött részecskék rövid (<10 cm) utat futnak be az ütközési térfogattól a detektorig, mely miatt a rekombináció valószínűsége elenyésző. A spektrométer további fontos tulajdonságai a következők: a számított spektrométerkonstansa k=0,6, relatív energiafeloldása R=3%, transzmissziója T≈0,7 és befogadó térszöge $\Delta\Omega$ ≈0,00108 sr.

3.2.2 Spektrométer a GANIL intézetben

A GANIL intézetben használt párhuzamos lemezpár elektrosztatikus spektrométer [75, 76] működési elve ugyanaz, mint az előző fejezetben (3.2.1 fejezet) bemutatott spektrométeré. A lényegi különbség a két spektrométer között, hogy együttműködőink az elektrosztatikus teret kiegészítették egy bekapcsolható mágneses eltérítéssel, melyet az elektrosztatikus analizátor elé (B1), és mögé (B2) helyezett tekercsekkel biztosítottak (lásd 3.17 ábra). Az így kapott kombinált elektromos és mágneses tér lehetővé tette, hogy a negatív ionokat és a folytonos energiaeloszlású elektronokat szétválasszuk. Így lehetővé vált negatív ionok keletkezésének vizsgálata OH⁺⁺Ar és O⁺ +H₂O ütközésekben [76, 113]. Az analizátor előtt és mögött elhelyezett tekercsek szolgáltatta átlagos térerősség ~ 10⁻⁵ T. Ez a beérkező elektronokat a Lorentz-erő miatt az ideális pálya elhagyására kényszerítette. Így a spektrumokat 2 keV energiáig mentesítettük az elektronok okozta zavaró hatásoktól. Az analizátor kilépő rése mögé helyezett tekercs (B2) a további nyalábtisztítást szolgáltat, mellyel már az analizátorban

keletkező szekunder elektronok zavaró hatását is ki lehetett küszöbölni. A 3.17 ábrán a detektort el nem érő töltött részecskék pályáját piros, a detektort elérő negatív ionokét pedig zöld színű nyíllal jelöltem.



3.17 ábra: A GANIL intézetben használt kombinált elektrosztatikus és mágneses teret alkalmazó spektrométer sematikus rajza.

A spektrométer – hasonlóan az Atomkiban kifejlesztetthez – egy forgatható gyűrűre volt felszerelve, mely segítségével a spektrométert az ütközési térfogat körül körbe lehetett forgatni. Energiafeloldása a mi spektrométerünknél valamivel gyengébb, R=5%, befogadó térszöge pedig $\Delta \Omega = 2^{\circ}$ volt.

3.3 Mérési elrendezések és módszerek

Méréseinket az Atomkiban az intézet 5 MV-os Van de Graaff részecskegyorsítójának Jobb-30 nyalábcsatornáján végeztük. A mérési elrendezés [112] nem méretarányos sematikus rajzát mutatja a 3.18 ábra. A gyorsító szolgáltatta ionnyalábból az analizáló mágnessel (A) válogattuk ki a megfelelő energiájú és töltésű ionokat, melyeket a kapcsolómágnessel (KM) a kiválasztott nyalábcsatornába irányítottunk. A megfelelő méretű és pozíciójú nyaláb kialakítására a nyalábcsatornán elhelyezett két mágneses kvadrupol lencsét (Q1 és Q2) használtuk. Az ionnyalábot ezután a K1 kollimátoron keresztül bevezettük egy általunk készített 15°-os elektrosztatikus eltérítő kamrába (ELT15).



3.18 ábra: Kísérleti elrendezés az Atomkiban. Az elektrosztatikus és mágneses nyalábformázó elemeket kékkel, a blendéket, és réseket szürke színnel jelöltem. A mérőkamrán belüli fontosabb elemeket eltérő színekkel emeltem ki: a fúvóka (F) zöld, a spektrométer (Spm) sárga, a Faraday-csészék (FC1 és FC2) lila, az ütközési zóna piros színt kapott. A további jelölések és a részletes leírás a szövegben található.

Az analizáló mágnes és mérőkamra közötti 15°-os eltérítés az ionnyaláb további tisztítását szolgálta. Az eltérítő kamrából a K2 kollimátoron keresztül lépett ki a nyaláb. Az éppen kilépő nyaláb irányának finom módosítását az eltérítő kamra után elhelyezett S_H és S_V lemezpárokra adott feszültség finom hangolásával végeztünk. A nyaláb további formázását és a kívánt kb. 2×2 mm-es nyalábméretet az R4 résnégyes, K3 fixen felszerelt és K4 forgatható gyűrűre szerelt kollimátorokkal értük el. Ez utóbbi már a mérőkamrában található. A kamrán – és ezzel együtt optimális esetben az ütközési zónán – keresztülhaladó ionnyaláb áramát a mérőkamra átellenes oldalán felszerelt kétfokozatú Faraday-csészében mértük. Az első fokozat (FC1) alján levő 1,5 mm átmérőjű lyuk valamint a mérőkamra előtti K2-K4 és R4 kollimátor rendszer

lehetővé tette a gyorsító által szolgáltatott ionnyaláb precíz, jól reprodukálható pozicionálását és méretezését: a nyaláb akkor haladt át az ütközési zónán optimálisan ha a K2-K4 és R4 kollimátor rendszeren áthaladva a Faraday-csésze hátsó ütemében (FC2) maximális áramot, az első, alján lyukas ütemben pedig minimális nyalábáramot mértünk. Mérések közben a K4 forgatható gyűrűre szerelt kollimátort eltávolítottuk a nyaláb útjából, hogy elkerüljük az ionok kamrában levő rések élein történő szóródását, és szekunder elektronok keletkezését.

A ~1 m³ térfogatú, henger alakú rozsdamentes acél mérőkamra kettős mágneses árnyékolással van felszerelve, mely a mágneses térerősséget a mérőkamrában <2 mGra csökkenti. A ~8·10⁻⁷ mbar vákuumot (gázbeeresztés nélkül), valamint a gáz céltárgyas méréseinkben beáramló gáz elszívását 2 db 2000 l/s szívósebességű, párhuzamosan kapcsolt turbómolekuláris szivattyú állítja elő. Ezek elővákuumát egy roots és egy rotációs szivattyú biztosítja. Gázbeeresztés mellett méréseinkben az egyensúlyi vákuumérték 3·10⁻⁶ és 1,5·10⁻⁵ mbar közötti volt.

A mérőkamrába a mérendő H_2O , CH_4 és N_2 gázokat egy fúvókán (F) keresztül engedtük be. A H_2O céltárgyat egy, a gázbeeresztő rendszerhez csatlakoztatott térfogatban levő víz vákuumtérbe történő bepárologtatásával, a CH_4 és N_2 gázokat pedig gáztartályból nyertük. A speciálisan megtisztított szén-dioxid mentes vizet bepárologtatás előtt tovább tisztítottuk a térfogat elővákuumra történő többszöri leszívásával. A fúvóka (F) a henger alakú kamra tengelyében helyezkedik el, mely tengely mentén függőleges irányban mozgatható. Mérés közben a fúvóka az ionnyaláb fölött, a nyaláb középvonalától kb. 7 mm távolságban helyezkedett el. A kiáramló gáznyalábot kereszteztük az ionnyalábbal. A gázbeeresztő rendszer megtervezése és megépítése disszertációm első tézispontja.

A spektrométer (Spm) működését, és főbb tulajdonságait már a 3.2.1 alfejezetben bemutattam, ezért itt csak a mérési geometriát vázolom (lásd 3.18 ábra). A spektrométer a kamra középpontja körül elforgatható két koncentrikus gyűrű egyikére van felszerelve, úgy, hogy belépő rése a kamra közepén található ütközési zóna felé néz. A forgatható gyűrűknek köszönhetően a spektrométer az ütközési zóna körül 360°-ban körbeforgatható. A spektrométer speciális "ék" alakjának köszönhetően mérés közben a nyalábot $\pm 15^{\circ}$ -ban tudtuk megközelíteni.

A mérés menete a következő: A 3.2.1 fejezetben leírtaknak megfelelően léptettük az analizátor feszültségét, minden egyes pontban két másodperces mérési idővel. Minden két másodperces mérési időt egy másodperc szünet követett, mely közben a tápegység az újabb feszültségre (energiaértékre) állt, és közben az adatok mentése is megtörtént. Ekkor rögzítettük az adott feszültséghez tartozó energiaértéket, a csatorna elektronsokszorozóban mért beütésszámot, és a Faraday-csészékbe beérkező töltést. A további fontos mérési paramétereket, úgymint puffernyomás, kamranyomás, nyalábirányhoz viszonyított megfigyelési szög, és a fúvóka függőleges pozíciója is folyamatosan naplóztuk.

A GANIL intézetben található mérőrendszer alapjaiban nagyon hasonló az előbb bemutatott, Atomkiban található elrendezéshez. Ezt a mérési elrendezést szemlélteti a 3.19-es ábra, mely részletes leírása megtalálható a [75, 76, 113] irodalmakban.

Az elrendezés röviden a következő: Az ECR ionforrásból jövő nyaláb megfelelő pozícióját és méretét sorban egy 90°-os analizáló mágnes (A1), egy horizontális eltérítő lemezpár (S_H), egy újabb 90°-os eltérítő mágnes (A2), valamint egy közvetlenül a kamra előtt elhelyezett résnégyes (R4) biztosította. A henger alakú, ~0,5 m³-es mérőkamra tengelyében helyezkedett el a vertikálisan, motorizáltan mozgatható fúvóka. A spektrométer (Spm) itt is egy, az ütközési zóna körül elforgatható gyűrűre volt felszerelve. Az ütközései zónát keresztező ionnyaláb áramát itt is kétfokozatú Faraday-csészében (FC) mértük, melynek első üteme blendeként szolgált.



A mérőrendszert 3 üzemmódban használtuk:

- Csak elektrosztatikus analizálással kétszeresen differenciális elektronemissziós, és kation fragmentum spektrumokat vettünk fel.
- Kombinált elektrosztatikus és mágneses térrel negatív ionok energia és szögeloszlását vizsgáltuk.

Az ionnyaláb szaggatásával a 3.19 ábrán látható mérőrendszert repülési idő spektrométerként használva, koincidencia technikát alkalmazva ellenőrző méréseket végeztünk a különböző atomi töredékek fajtájának a meghatározására, mind pozitív, mind negatív fragmentumok esetén. A 2 μs-os mérési időtartamok 60 μs-os periódussal követték egymást. Az elektrosztatikus spektrométert beállítottuk egy adott megfigyelési szögre és energiára. A detektorba beérkező töltött fragmentumok repülési idejét mérve a ~20 cm hosszúságú úton az ütközési zónától a detektorig a H⁺ és H⁻ fragmentumokat egyértelműen külön tudtuk válogatni nehézion párjaiktól (O⁻, OH⁻).

4. Saját eredmények

A fejezetben saját eredményeimet ismertetem a tézisfüzetben megadott pontoknak megfelelő felosztásban és sorrendben. Elsőként a 4.1 alfejezetben bemutatom az általam kifejlesztett gázbeeresztő rendszert, valamint a céltárgy részecskesűrűségének meghatározására szolgáló két módszert. A 4.2 alfejezetben ismertetem az abszolút ionizációs és fragmentációs hatáskeresztmetszet meghatározására alkalmazott eljárást. A 4.3 alfejezetben bemutatom a kis molekulák ionbombázással kiváltott ionizációjának vizsgálatában elért eredményeimet. A 4.4 alfejezetben kis molekulák ionbombázással kiváltott fragmentációjának vizsgálatában elért eredményeimet ismertetem, majd bemutatom, hogy a fragmentációs spektrumokból hogyan származtatok többszörös ionizációs hatáskeresztmetszeteket. A 4.5 alfejezetben negatív ion-fragmentumok keletkezését tárgyalom kilo-elektronvolt energiájú ion-molekula ütközésekben.

4.1 Mérőrendszer: széles nyomástartományban működő gáz céltárgy rendszer kifejlesztése

Gáz céltárgyak esetében a legfontosabb jellemzők a céltárgy részecskesűrűsége és a gáznyaláb geometriája. A túl kicsi gázsűrűség értelmetlenül hosszú mérési időt és rossz jel-háttér arányt eredményezhet, a túl nagy sűrűségű gázban pedig rekombinációs folyamatok és többszörös ütközések hamisíthatják meg a primer folyamatok (pl. céltárgy ionizáció, molekula szétesés) mérésére irányuló törekvéseinket. Hasonlóan fontos a gáznyaláb minősége is, pl. annak széttartása, sűrűségeloszlása. A következőkben bemutatom az általam tervezett gázbeeresztő rendszert.

A gáznyaláb céltárgynak minimálisan a következő feltételeket kell kielégítenie:

- 1. a céltárgy részecskesűrűsége a $1\times10^{13}\text{-}1\times10^{14}$ /cm³ tartományban finoman változtatható legyen,
- 2. a céltárgy részecskesűrűsége ne reagáljon érzékenyen a gázbeeresztő rendszerben előforduló, rövid ideig tartó nyomásingadozásokra,
- 3. minél kisebb legyen a gáznyaláb divergenciája,
- 4. a fúvóka mozgatható legyen a henger alakú mérőkamra tengelye mentén, és így az ionnyalábtól minimum 20 cm-re eltávolítható legyen.



4.20 ábra: A gáz céltárgy rendszer sematikus, nem méretarányos rajza. Az alkatrészeket a vákuumtechnikában használatos módon ábrázoltam. További magyarázat és a betűjelzések jelentése a szövegben található.

A fenti feltételek kielégítésére megterveztem és megépítettem a 4.20 ábrán látható gázsugár-céltárgy rendszert [112]. Működése a következő: A nagynyomású gázpalackból a mérendő gázt egy Ny nyomáscsökkentőn és Sz1 szelepen keresztül engedjük be a csőrendszerbe. H₂O céltárgy esetén a víztartályból egy másik szelepen keresztül (Sz2) engedjük be a vízgőzt a rendszerbe. Mind a gázpalack, mind a víztartály külön-külön leválasztható a rendszerről az Sz1 és Sz2 kézi szelepekkel. A Tsz tűszelep megnyitásával a mérendő gáz, ill. gőz egy 2 literes puffertartályba áramlik, melyben a nyomást egy manométer (*M*) méri. A manométer által adott jelet – mely a nyomással arányos – egy nyomásszabályzó elektronika dolgozza fel, mely a tűszelepet vezérelve a gáznyomást a puffertartályban mindig a beállított nyomásértéken tartja. A tűszelep utáni csőszakaszon – a puffertartály előtt – található még egy további szeleppel (Sz3) ellátott leágazás. Ezen keresztül történik a mérés előtt és gázcsere esetén a gázbeeresztő rendszer megtisztítása a maradékgázoktól. Erre egy rotációs szivattyút (*R*) alkalmazunk. A puffertartályból egy 2 méteres csőszakasz vezet az Sz4 kézi szelephez. Ehhez csatlakozik az a rozsdamentes acél cső, mely a fúvókában végződik.

A cső a fúvókával együtt egy Wilson tömítésekkel ellátott nyíláson keresztül függőleges irányban mozgatható. Ez teszi lehetővé a fúvóka ionnyalábtól mért távolságának beállítását. A pontos pozicionálást a kamrán kívül, a fúvóka szárához rögzített csavarmenetes emelő szerkezet és skála segíti, mellyel a fúvóka helyzete \pm 0,1 mm pontossággal beállítható.

A gázáram szabályozása a *Tsz* tűszeleppel történik. A puffertartályban beállított nyomástól függ a gáz céltárgy molekula-sűrűsége. Ezt a nyomást a 10-100 mbar tartományban tudjuk kényelmesen szabályozni, ezért fojtásként be kellett építenünk egy 20 cm hosszú 0,035 cm átmérőjű kapillárist (lásd 4.20 ábra), melynek első, ~1 cm-es szakaszán az áramlási keresztmetszetet egy drótszállal tovább szűkítettük. A tervezési munka lényeges része volt a céltárgy részecskesűrűségének a geometria pontos ismeretében, az áramlási viszonyok figyelembevételével történő meghatározása.

4.1.1 A céltárgy részecskesűrűségének meghatározása

Az abszolút hatáskeresztmetszet meghatározásának egyik legkritikusabb pontja a céltárgy részecskesűrűségének ismerete. Gáz-sugár céltárgy esetén ennek közvetlen mérésére, vagyis a számolásokkal meghatározott sűrűség direkt ellenőrzésére nincs lehetőség. A részecskesűrűség meghatározására ezért egy közvetett, a hatáskeresztmetszet mérésen alapuló módszert alkalmaztam [76], mellyel ellenőrizni tudtam az áramlástani formulákat felhasználó eljárást.

A tervezés során meghatároztam a puffernyomás és céltárgy részecskesűrűsége közötti kapcsolatot. A kamranyomás tipikus értéke a mérések során $1 \cdot 10^{-5}$ mbar alatt volt, melyet a gázmennyiség áram szempontjából jó közelítéssel 0 mbar-nak vehetünk. A gázbeeresztő csőrendszer geometriai paramétereit ismerve [114]-ben található félempirikus vákuumfizikai képleteket felhasználva, a csőrendszer egyes szakaszainak áramlási ellenállása (Z_i) és ebből az eredő gázmennyiség áram (C) kiszámolható. A fúvókán kiáramló gázmennyiségből pedig a gáznyaláb széttartását számításba véve (lásd később) becslést tudtam adni a céltárgy részecskesűrűségére. A csőrendszer sematikus rajza a 4.21 ábrán látható.

Mivel [114] szerint a különböző áramlásjellegek és típusok esetén más-más képlet érvényes, először ezeket kell meghatározni. Az áramlás jellegét a Reynolds-számmal (*R*), a típusát pedig a Knudsen-számmal (*K*) adhatjuk meg, melyek a következőképpen számolhatók:

$$R = \frac{8.4 \cdot C}{D} \quad és \quad K = \frac{L_{\acute{atl}}}{D} \quad ahol \quad L_{\acute{atl}} = \frac{kT}{4\sqrt{2} p \sigma}$$
(34)

A kifejezésekben *C* a gázmennyiség áram, *D* a csőszakasz átmérője, $L_{\text{átl}}$ pedig a részecskék közepes szabad úthossza, mely függ a *T* hőmérséklettől, *p* nyomástól, és a $\sigma = 2r^2\pi$ ütközési hatáskeresztmetszettől. Továbbá *k* a Boltzmann-állandó, *r* értékére pedig egy átlagos *r*=2·10⁻⁸ cm részecskesugarat tekintettem.



4.21 ábra: A számolás szempontjából szakaszokra osztott gázbeeresztő csőrendszer sematikus ábrája.

A (34) kifejezések alapján a gázbeeresztő rendszer 1-4 szakaszain az áramlás jellege lamináris, típusa pedig a durva-vákuum tartományra jellemző viszkózus áramlás. Az 5ös szakaszon az áramlás típusa a viszkózus és molekuláris áramlás közti átmeneti tartományba esik. (Az áramlás típusát az határozza meg, hogy a részecskék közepes szabad úthosszuk alapján a csőrendszer falával, vagy egymással ütköznek gyakrabban. Előbbi esetben molekuláris, utóbbiban viszkózus áramlásról beszélünk.)

A fentiek ismeretében a 4.21 ábrán jelölt szakaszok áramlási ellenállásait a következő kifejezések adják:

$$Z_2 = \left(137 \cdot \frac{D_2^4}{l_2} \cdot \bar{p}_2\right)^{-1} \tag{35}$$

$$Z_{3,Gy} = \left(195 \frac{a^2 b^2}{l_{3,Gy}} \bar{p}_{3,Gy} Y\right)^{-1} \quad \acute{es} \quad Z_{3,k} = \left(137 \cdot \frac{D_{3,k}^4}{l_{3,k}} \cdot \bar{p}_{3,k}\right)^{-1}$$
(36)

$$Z_4 = \left(137 \cdot \frac{D_4^4}{l_4} \cdot \bar{p}_4\right)^{-1} \tag{37}$$

$$Z_{5} = \left(12, 1\frac{D_{5}^{3}}{l_{5}}j\right)^{-1}$$
(38)

Itt *j a* $D_5 \bar{p}_4$ -tól függő szorzófaktor, melyet a

$$j = \frac{1 + 204 D_5 \bar{p}_4 + 2708 (D_5 \bar{p}_4)^2}{1 + 238 D_5 \bar{p}_4}$$
(39)

kifejezés ad meg.

A (35)-(39) képletekben a D_i -k az egyes csőszakaszok átmérőjét, az l_i -k a csőszakaszok hosszát a \bar{p}_i -k pedig a nyomásokat jelölik. Ez utóbbit nem tudtuk minden csőszakaszon egyértelműen megmérni, ezért logikus egyszerűsítésekkel éltünk: \bar{p}_2 re a D_2 =0,5 cm csőszakasz átmérője miatt jó közelítéssel beírhatjuk a puffernyomást (p_{puff}). Mivel a fojtásokon a nyomás drasztikusan lecsökken, a $\bar{p}_{3,Gy}$ szakasz átlagnyomásaként beírhatjuk a puffernyomás felét ($p_{puff}/2$), $\bar{p}_{3,k}$ értékét pedig a módszer programozott változatában iterációval határoztam meg. A 4. csőszakasz vastagsága miatt p_4 értékére első közelítésben a kettes szakaszéhoz hasonló egyszerűsítéssel éltem, vagyis az egész szakaszra beírtam a p_4 = $\bar{p}_{3,k}$ értéket. A "3,Gy" szakaszon a fojtás gyűrű keresztmetszetű. Ennek áramlási ellenállását egy téglalap keresztmetszetű, nagy a/b oldalarányú csőszakasszal közelítettem. A (36) kifejezésben Y ettől az a/b aránytól függő paraméter [114].

A fenti "sorba kapcsolt ellenállások" összegeként meghatároztam az eredő áramlási ellenállást ($Z_{\rm er}$):

$$Z_{er} = Z_2 + Z_{3,Gy} + Z_{3,k} + Z_4 + Z_5$$
(40)

Ezt felhasználva, és figyelembe véve, hogy a kamranyomás a puffernyomáshoz képest 0-nak tekinthető, kiszámoltam a $C=p_{puff}/Z_{er}$ eredő gázmennyiség áramot, melyet részecskeárammá (d*N*/d*t*) konvertáltam:

$$\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t} = \frac{C\,\mathrm{N}_{\mathrm{A}}}{\mathrm{R}\,T} = \frac{p_{puff}\,\mathrm{N}_{\mathrm{A}}}{Z_{er}\,\mathrm{R}\,T} = \rho_{Fki}\,\nu_{Fki}A_{Fki} \tag{41}$$

A második kifejezésben N_A az Avogadro-szám, R az egyetemes gázállandó, ρ_{Fki} a fúvókán kiáramló gáz sűrűsége, v_{Fki} az áramlási sebesség, A_{Fki} pedig a fúvókába fúrt kapillárisnak az áramlás irányára merőlegesen vett felülete. Durva közelítésben a nyomást a kapilláris teljes hosszán egyenlőnek feltételezve megkaphatjuk v_{Fki} lehetséges legkisebb értékét, mely (42)-ből határozható meg. Ezután (41)-be $v_{\text{Fki}, \min}$ -t

helyettesítve megkapjuk a fúvóka kilépő résének középpontjában fellépő legmagasabb nyomást ($\rho_{Fki,max}$).

$$v_{Fki,min} = \frac{A_4}{A_{Fki}} v_4 \quad melyb \tilde{o}l \quad \rho_{Fki,max} = \frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{dt}} \cdot \frac{1}{A_4} v_4 \tag{42}$$

A kamrába beáramló gáz további sűrűségcsökkenését a következőkből származtattam: 1) a gáznyaláb kúp alakban szétterül; 2) a beáramló gázrészecskék egy része a spektrométer látószögén kívülre szóródik. Utóbbi miatt a spektrométer által látott céltárgy hossznak megfelelő nyílásszögbe a részecskeáram ~60 %-a esik. A gáznyaláb kiszélesedésből adódó nyomáscsökkenést az 5. szakasz (fúvóka kapillárisa) áramlási keresztmetszetéből ($D_{Fúv}$) és a céltérfogat spektrométer által látott hosszából ($L_{céltárgy}$) kaptam meg:

$$\rho_{c\acute{e}lt\acute{a}rgy} = \rho_{Fki} \frac{\left(\frac{D_{F\acute{u}v}}{2}\right)^2 \pi}{\left(\frac{L_{c\acute{e}lt\acute{a}rgy}}{2}\right)^2 \pi}$$
(43)

A módszert beprogramozva és automatizálva v_4 -et, és $\overline{p}_{3,k}$ -t iterációval határoztam meg. Figyelembe vettem az adott gázok viszkozitását is valamint azt a tényt, hogy kis puffernyomásoknál az áramlás a fúvókában még tisztán molekuláris, a puffernyomás növekedésével pedig egyre inkább a lamináris jelleg irányába változik. A kapott nemlineáris függvénykapcsolatot a puffernyomás és a céltárgy sűrűsége közt a 2.22 ábrán mutatom be (lásd később).

Az eredményt egy, a hatáskeresztmetszet mérésén alapuló módszerrel hitelesítettem. Ez azon alapul, hogy a mérőkamrát elárasztjuk a mérendő gázzal. Ezt úgy tesszük, hogy a fúvókát több mint 20 cm-re eltávolítjuk a kamrát keresztező ionnyalábtól, így elérjük, hogy a beeresztett gáz egyenletesen töltse ki a kamrát. A nyomás a ütközési zónában ekkor megegyezik a kamra nyomását mérő ionizációs vákuummérőről leolvasott értékkel. A céltárgy részecskesűrűségét ($\rho_{elár}$) ekkor a (44) kifejezés adja meg, ahol $p_{elár}$ a gázbeeresztéssel mért nyomás, p_m a gázbeeresztés nélküli nyomás a kamrában, (mely a maradékgáz nyomását jelenti), k a Boltzmannállandó, T pedig a hőmérséklet, melyet jó közelítéssel 298 K-nek tekinthetünk [114].

$$\rho_{el\acute{a}r} = \frac{p_{el\acute{a}r} - p_m}{kT} \tag{44}$$

Elárasztásos méréseinkből meghatároztam a relatív hatáskeresztmetszeteket (σ_{rel}), melyben a mért beütésszámokat ($n_{elár}$) csak a céltárgy részecskesűrűségére ($\rho_{elár}$,) normáljuk, a többi paraméter (gyűjtött töltés, megfigyelési szög, stb.) változatlanul tartása mellett:

$$\sigma_{rel} = \frac{n_{el\acute{a}r}}{\rho_{el\acute{a}r}} \tag{45}$$

A fenti hatáskeresztmetszet mérést a fúvóka leengedett pozíciója mellett megismételve – amikor az a nyaláb fölött 2 mm-re helyezkedik el – a kamrában az ionizációs vákuummérővel a p_{le} nyomásértéket mérjük. A fúvóka leengedése miatt az ütközési zónában megnövekedett céltárgy részecskesűrűségét ugyan most nem ismerjük, a normálást mégis ezzel az

$$\rho_{le} = G \frac{(p_{le} - p_m)}{kT} \tag{46}$$

ismeretlen sűrűséggel kell elvégeznünk. A kifejezésben *G* egy egyenlőre ismeretlen ún. sűrítési tényező, amely azt fejezi ki, hogy a fúvókából kiáramló céltárgy gáz az ütközési zónában, hányszor sűrűbb annál, mint amit a kamrában elárasztásos módszerrel mérnénk. A $p_{\text{elár}}$, p_{le} és a p_{m} értékeket is ugyanarról az ionizációs vákuummérőről olvassuk le. Leengedett fúvókával, az ütközési zónában megnövekedett részecskesűrűség miatt, az elárasztásos mérésekhez képest megnövekedett hozamot ($n_{\text{fúv}}$) mérünk. A hatáskeresztmetszet természetesen nem függhet attól, hogy elárasztással, vagy leeresztett fúvókával mérünk. Ezért igaz az alábbi egyenlőség:

$$\sigma_{rel} = \frac{n_{el\acute{a}r}}{\rho_{el\acute{a}r}} = \frac{n_{le}}{\rho_{le}}$$
(47)

A kifejezésben az "elár" alsó indexszel jelölt mennyiségek az elárasztásos, a "le" alsó indexszel jelölt mennyiségek a fúvóka leengedett pozíciójához tartoznak. Az egyenletből a *G* sűrítési tényező ρ_{le} behelyettesítésével meghatározható. Ugyanazon megfigyelési szögeknél a különböző céltárgy molekulákra kapott sűrítési tényezőket a 4.2 táblázat mutatja. A céltárgysűrűségek ($\rho_{elár}$, ρ_{le}) meghatározásánál még figyelembe

kellett venni az ionizációs vákuummérő különböző gázokra vonatkozó érzékenységét (R_{g}) is. Ennek értékei nitrogén gázra $R_{g,N2}$ =1; vízre $R_{g,H2O}$ =1,12; és metánra $R_{g,CH4}$ =1,4.

4.2 táblázat: A különböző céltárgy gázokra kapott sűrítési tényezők. Külön oszlopban tüntettem fel az elektron és ion spektrumok analizálásával kapott értékeket.

Céltárgy	G értéke az ionspektrumokból	G értéke az elektronspektrumokból
CH_4	55 ±10%	46 ±10%
H ₂ O	55 ±10%	46 ±10%
N_2	62 ±10%	$50 \pm 10\%$



4.22 ábra: A céltárgy részecskesűrűsége a puffernyomás függvényében metán céltárgy esetén. A folytonos vonal a gázbeeresztő rendszer paramétereiből számolt, a pontok pedig a sűrítésből, G felhasználásával kapott céltárgy sűrűségeket mutatja. Utóbbinál a relatív hibákat is feltüntettem az ábrán.

A fúvóka sűrítési tényezőjét felhasználó módszer csak viszonylag nagy gázmennyiség áramokkal ($p_{puff}>20$ mbar) adott pontos, jól reprodukálódó céltárgy részecskesűrűséget. Ennek oka, hogy alacsony puffernyomás esetén a gázbeáramlásból származó kamranyomás-növekmény már összemérhető a háttérgázok nyomásával. Utóbbi összetétele és járuléka a kamra folyamatos tisztulása miatt időben változik. Ezt a bizonytalanságot kiküszöbölendő, méréseimet a legtöbb esetben 30 mbar

puffernyomás fölött végeztem. Ahol ez nem volt lehetséges (pl. víz céltárgy), ott is mindig 20 mbar puffernyomás fölött dolgoztam.

A számolt eredmények jól egyeztek az elárasztásos módszerrel kapott céltárgy részecskesűrűségekkel (4.22 ábra). Az egyezés a számolt eredményeimet is hitelesíti. Látható, hogy mind az elárasztásos módszerrel kapott, mind a számolt céltárgysűrűségek nemlineáris viselkedést mutatnak. A két módszerrel a céltárgy részecskesűrűsége széles nyomástartományban, és kielégítő pontossággal meghatározhatóvá vált. Az eredmények megmutatták, hogy a [114]-ben leírt, félempirikus vákuumfizikai képletek jól működnek a kapillárisok mérettartományában is.

A 4.1 alfejezet összefoglalásaként elmondhatom, hogy kifejlesztettem és megépítettem egy gáz céltárgy rendszert molekula fragmentációs kísérletekhez. A mechanikai követelmények kielégítése mellett a gázbeeresztő rendszerrel a céltérfogat részecskesűrűsége a puffernyomás módosításával finoman szabályozható volt, mellyel azt az optimális tartományban lehetett tartani. Az ütközési zóna részecskesűrűsége az apróbb nyomásfluktuációkra érzéketlen volt.

Az abszolút hatáskeresztmetszetek meghatározása szempontjából kulcsfontosságú mennyiséget, a céltárgy részecskesűrűségét a megtervezett gázbeeresztő rendszer paramétereit felhasználva, az áramlási ellenállásokon keresztül, a gázmennyiség áramokból származtattam. Így megkaptam a céltárgynak a puffernyomás függvényében nemlineárisan változó részecskesűrűségét. A számolt sűrűségértékek ellenőrzéséül egy hatáskeresztmetszet méréseken alapuló kalibrációs módszert is alkalmaztam. A kamrát a mérendő gázzal elárasztva, a kamranyomás és a céltérfogatban uralkodó gáznyomás között határoztam meg közvetlen összefüggést. Így kalibrálni tudtam a puffernyomás és céltárgy részecskesűrűsége közti nemlineáris függvénykapcsolatot. Az elárasztással kapott eredmények nagyobb puffernyomásokon adnak jó eredményt, kis nyomások esetén azonban a háttérgázok növekvő szerepe egyre nagyobb hibát okoz. Az áramlási viszonyokból számolt céltárgysűrűségek kis nyomásokon is megbízható eredményt adnak, mely a hatáskeresztmetszetek nyomásfüggetlenségével ellenőrizhető is. A két módszer együtt széles részecskesűrűség-tartományban teszi lehetővé abszolút hatáskeresztmetszetek megbízható meghatározását.

A gáz céltárgy rendszer megtervezését, megépítését, tesztelését, valamint a céltárgy részecskesűrűségének meghatározására szolgáló módszerek kidolgozását 100%-ban saját munkámnak tekintem. A tézisponthoz a [2], [9], [11] és [O8] közleményeim kapcsolódnak.

4.2 Differenciális abszolút hatáskeresztmetszetek meghatározása

Gáz céltárgy ionokkal való bombázása során egy ρ részecskesűrűséggel jellemzett térfogatot bombázunk N részecskeszámmal jellemezett ionnyalábbal. Ezt a térfogatot figyeljük egy spektrométerrel, melyet az ionnyaláb irányához képest θ szögben helyezünk el. A spektrométer az ütközései zóna teljes hosszából L_{eff} effektív hosszúságot lát, melyet a spektrométer belépő rései határoznak meg. A spektrométer által látott effektív zónából csak azok a részecskék jutnak be az analizátorba, melyek $\Delta \Omega$ térszögben (spektrométer befogadó térszöge) lépnek ki. A detektorral ΔE energiatartományban mérünk, melyben η hatásfokkal n részecskét detektálunk. A leírt ütközési elrendezést a felsorolt paraméterekkel a 4.23 ábra mutatja.



4.23 ábra: Az abszolút hatáskeresztmetszet meghatározásához szükséges paramétereket szemléltető ábra.

A fenti feltételek mellett a detektorral mért *n* beütésszám a következő:

$$n = N \cdot R \cdot E \cdot L_{eff} \cdot \Delta \, \Omega \cdot \rho \cdot \eta \cdot \frac{d^2 \, \sigma}{d \, \theta \, dE} \tag{48}$$

Egy kiterjedt ütközési térfogatból a detektor által látott L_{eff} hosszúság függ a θ megfigyelési szögtől. L_{eff} -et megadó kifejezést később részletesen tárgyalom. Az R és E paraméterek az analizátor 3.2 fejezetben definiált relatív energiafeloldása, és a mérendő nominális energia.

A (48) kifejezésből a differenciális abszolút hatáskeresztmetszetet a következőképpen kapjuk:

$$\frac{d^2 \sigma}{d \theta \ dE} = \frac{n}{N \cdot R \cdot E \cdot L_{eff} \cdot \Delta \Omega \cdot \rho \cdot \eta}$$
(49)

A (48) és (49) képletben felhasznált paraméterek értékeit az alábbi módon határoztam meg:

• A céltérfogaton keresztülhaladó ionok számát (*N*) a Faraday-csészében mért és integrált nyalábáram alapján az

$$N = \frac{Q}{qe} \tag{50}$$

kifejezés adja, ahol Q a gyűjtött töltés, q a nyalábot alkotó ionok töltése, e pedig az elemi töltés.

- *R* a spektrométer relatív energiafeloldása, melyet az analizátor tulajdonságai határoznak meg, a 3.2 alfejezetben található (33) képletnek megfelelően.
- E_k az analizátorra adott feszültségnek (*U*) megfelelő nominális energia, melyet az $E_k=U/k$ képlet (lásd 3.2 alfejezet) ad meg, ahol a *k* spektrométerkonstans (esetünkben *k*=0,6).
- Az ütközési zóna L_{eff} effektív hossza 90° megfigyelési szögnél minimális, melytől mind 0°, mind 180° felé haladva a spektrométer által látott hossz növekszik. Az ütközési zóna tulajdonságait tekintve L_{eff} szögfüggésének két határesetét különböztethetjük meg [76, 89]: 1) Amennyiben az ütközési zóna elég kicsi (a gáz céltárgy és az ionnyaláb kis átmérőjű hengereknek, maga a zóna gyakorlatilag pontszerűnek tekinthető), a spektrométer bármilyen megfigyelési szögbe fordítva látja a teljes zónát, ezért L_{eff} nem szorul korrekcióra. 2) Ha egy hosszú, vonalszerű ütközési zónát feltételezünk, melyet a céltárgy gáz homogén eloszlással tölt ki (pl. elárasztásos mérések), kis és nagy szögekben a zóna effektív hosszát az
$L_{eff} = L_{90} \frac{1}{\sin(\theta)}$ adja, ahol L_{90} a 90° megfigyelési szöghöz tartozó hossz. Valós gát céltárgyak esetén az ütközési zóna effektív hossza az előbbi két határeset közé esik: a céltárgy kiterjedt, és inhomogén. A gáz kúp alakban áramlik ki a fúvókából úgy, hogy sűrűsége a kúp tengelyétől távolodva csökken. L_{eff} -et ekkor a fenti két határeset lineáris kombinációjával közelítjük, a következő kifejezéssel:

$$L_{eff} = L_{90} \frac{1}{c + (1 - c)\sin(\theta)}$$
(51)

A *c* paraméter értékét a különböző szögek alatt mért, és izotróp szögeloszlásúnak feltételezett, ionfragmentum-hozam spektrumoknak az egymásra illesztéséből határoztuk meg. A fragmentum emisszió izotróp eloszlására abból következtettünk, hogy a kamrát egyenletesen elárasztva a mérendő gázzal, az

 $\frac{1}{\sin(\theta)}$ szögkorrekciót használva a különböző szögek alatt mért spektrumok egybeestek. Normál gáz céltárgyas méréseinkben a (51) kifejezést alkalmazva c=0,6 érték adta a legjobb szögkorrekciót, melynek eredményét a 4.24 ábra mutatja.



4.24 ábra: 20° , 45° és 90° megfigyelési szöghöz tartozó fragmentációs hozam görbék 650 keV N⁺+CH₄ ütközésekben: a) szögkorrekció nélkül; b) hatáskeresztmetszetek a (51) kifejezés szerinti szögkorrekcióval, c=0,6 érték mellet.

- A spektrométer befogadó térszögét (ΔΩ) hasonlóan az effektív céltérfogat hosszához – a spektrométer ütközési térfogattól vett távolsága, és belépő rései határozzák meg. A befogadó térszög értékére esetünkben ΔΩ=0,00108 sr adódott.
- A céltárgy részecskesűrűségének (ρ) becslésére alkalmazott két módszert a 4.1.1 alfejezetben ismertettem.
- Az η detektálási hatásfok esetünkben több komponensből tevődik össze: a detektor hatásfoka, a detektor előtti háló áteresztése, a réseken és éleken való szóródás, valamint az elektronika hatásfoka. A hatásfokot a detektor adatlapja és a geometriai viszonyok alapján η=0,7-nek vettük. Az abszolút hatáskeresztmetszet meghatározásához szükséges többi paraméter ismeretében ezzel az értékkel az általunk 1 MeV H⁺+CH₄ ütközésekben kapott ionizációs hatáskeresztmetszetek jól illeszkedtek a referencia adatokra [52] (lásd 4.25-ös ábra).



4.25 ábra: 1 MeV H^++CH_4 ütközésekben, 45° megfigyelési szögben mért hatáskeresztmetszet spektrum illeszkedése a Wilson és Toburen által [52] kapott adatokra $\eta=0,7$ detektálási hatásfok esetén.

A bemutatott módszerrel kétszeresen differenciális ionizációs és fragmentációs abszolút hatáskeresztmetszeteket határoztam meg. A céltárgy sűrűségének becsléséből származó hiba minimalizálásának érdekében a további eredmények mindegyikét a fúvóka sűrítéséből kapott céltárgy-sűrűségek felhasználásával számoltam. Így az abszolút hatáskeresztmetszetek teljes hibája mindenütt kisebb volt mint 40%. Végső lépésként az abszolút hatáskeresztmetszet meghatározásának módszerét C# programnyelven programozva automatizáltam.

A 4.2 alfejezetet összefoglalva elmondhatom, a szög szerint differenciális abszolút hatáskeresztmetszetek meghatározására azonosítottam a releváns paramétereket, és kidolgoztam azok pontos mérésének, illetve meghatározásának módját. A megfigyelési szög függvényében mért hozamok differenciális hatáskeresztmetszetekké konvertálására kidolgoztam és jó eredménnyel alkalmaztam egy korrekciós formulát, mely a homogén, és a hengeres céltárgyakra vonatkozó összefüggések lineáris kombinációján alapul. Ennek egyetlen szabad paraméterét az elárasztásos kontrollmérések segítségével határoztam meg. Az 1 MeV H⁺+CH₄ ütközésekben kapott kétszeresen differenciális ionizációs hatáskeresztmetszetek jól egyeznek a W. E. Wilson és L. H. Toburen [52] által mért, referencia adatoknak tekintett hatáskeresztmetszetekkel.

A leírt munkát teljes egészében én végeztem, és saját eredményemnek tekintem. A tézisponthoz a [2], [9], [11] és [O8] közleményeim kapcsolódnak.

4.3 Kis molekulák ionbombázással kiváltott ionizációjának vizsgálata

Munkám során energia és szög szerint differenciális elektronemissziós spektrumokat mértem az 1 MeV H⁺+CH₄, 1 MeV H⁺+H₂O, 1 MeV H⁺+N₂, 1 MeV He⁺+CH₄, 1 MeV He⁺+H₂O, 1 MeV He⁺+N₂, 650 keV N⁺+CH₄, 650 keV N⁺+H₂O és 650 keV N⁺+N₂ ütközési rendszerekben. A 4.1 és 4.2 alfejezetben leírt módszerrel a mért spektrumokból differenciális elektronemissziós abszolút hatáskeresztmetszeteket határoztam meg. A további alfejezetekben ezek általános jellemzőinek bemutatása után elemzem a különböző lövedékekkel és céltárgyakkal kapott hatáskeresztmetszeteket. A differenciális hatáskeresztmetszetek értelmezéséhez, és a különböző elektronemissziós mechanizmusok hozamának azonosításához CTMC és CDW-EIS számolások eredményeit is felhasználom.

4.3.1 A mért spektrumok általános jellemzői

Spektrumainkat különböző elektronemissziós mechanizmusokból származó elektronok alkotják. A kapott összetett spektrumokban azonosítottam a különböző

ionizációs mechanizmusokból származó struktúrákat. A következőkben áttekintem a spektrumokból számolt elektronemissziós differenciális hatáskeresztmetszetek általános jellemzőit.





A 4.26 ábra szerint a hatáskeresztmetszet kis elektronenergiákon éri el a maximumát, és a 3-1000 eV energiatartományban több, mint öt nagyságrendet csökken. A csökkenést csak az Auger-elektronok karakterisztikus energiáján megjelenő csúcsa, és a kéttest ütközésből származó elektronok szélesebb tartománya szakítja meg. A 4.26 ábra b) részén látható hatáskeresztmetszeteket N⁺+CH₄ ütközésekben kaptuk. Itt, ellentétben a H⁺+CH₄ ütközésben kapott spektrumokkal, nem egy, hanem két Auger csúcs jelenik meg. Ezek közül a nitrogénion-lövedékről származó Auger-elektron csúcs energiája a megfigyelési szög növekedésével csökken, mely a mozgó lövedékről származó elektronok kinetikus energiájának laboratóriumi

koordináta rendszerben történő mérésének az eredménye. 90°-ban mért ~350 eV-es értéke hibahatáron belül megegyezik a nitrogén KLL Auger csúcsának energiájával. A metán céltárgytárgy-molekula szénatomjáról származó Auger-elektronok energiája nem függ a megfigyelési szögtől, ~270 eV-es energiája szintén jó egyezést mutat az irodalomban fellelhető adatokkal. A klasszikus kéttest ütközésekből származó csúcs maximumát a 2.3.3 alfejezetben található (7) kifejezés jól visszaadja. Ezen elektronok az 1 MeV H⁺+CH₄ ütközésekben egy markáns csúcsot adnak a spektrumok nagy energiás részén (4.26 ábra a) része). A 650 keV-es N⁺ lövedékkel mért spektrumokban a csúcs megfigyelési szögtől függően 0-75 eV közé esik, mely tartományban a lágy ütközésekből származó elektronok hozama elfedi azt.

4.3.2 Elektronemissziós hatáskeresztmetszetek kísérleti meghatározása

Az általános hasonlóság mellett a különböző lövedékekkel indukált elektronemissziós hatáskeresztmetszetek jelentősen eltérnek egymástól. Az eltéréseket szemlélteti a 4.27 ábra. A legszembetűnőbb különbség, hogy azonos céltárgy esetén az elektron hozamok a H⁺ lövedéktől, a He⁺ lövedéken át, a N⁺-ig növekednek. A nitrogén ion lövedékkel kapott hozamok bármely megfigyelési szögnél minimum egy nagyságrenddel nagyobbak, mint a proton lövedékkel indukáltak.

Bár lövedékeink töltése egységnyi volt, a különböző lövedékekkel kapott elektronemissziós hatáskeresztmetszetek mégis jelentősen különböznek egymástól. Ezt a különbséget a nehezebb lövedék erősebb perturbációjának tulajdonítottam. A perturbáció erősségét a Bohr-Sommerfeld paraméteren keresztül vizsgálva [59] (lásd a (11) kifejezést a 2.3.6 alfejezetben), azt a lövedék iontöltése, és sebessége határozza meg. Lövedékeink esetén a sebességarányokra H^+ : He^+ : N^+ = 6,3 : 1,6 : 1,3 adódott. A Bohr-Sommerfeld paraméterek így k_{BS,H^+} = 0,16, k_{BS,He^+} = 0,63, és k_{BS,N^+} = 0,74, melyek mutatják a lassúbb lövedék erősebb perturbációját. Ezek a sebességarányok már önmagukban is magyarázhatnák a H^+ és N^+ lövedékkel kapott hatáskeresztmetszetek közti több, mint egy nagyságrendnyi különbséget.

Az árnyékolt ion-lövedékek által kiváltott ionizációban azonban a perturbáció erőssége az ütközési (impakt) paraméter (*b*) függvényében is változik. Igen közeli ütközésekben a céltárgy és lövedék elektronfelhői oly mértékben átfedésbe kerülhetnek, hogy a lövedék elektronjainak magtöltést árnyékoló szerepe lecsökken [50, 89]. Ilyenkor a céltárgy elektronjainak egy része egy pillanatra megnövekedett iontöltést lát, és erősebb Coulomb-vonzást érez. A céltárgy (és ahol az lehetséges a lövedék is) ekkor nagy valószínűséggel ionizálódik.

4.27

eltérő

10 b) 10 ábra: Elektronemissziós 10 hatáskeresztmetszetek H₂O céltárgyat G (cm²/eV*sr) 10-16 bombázva a) 1 MeV H^+ , b) 1 MeV He^+ , 10 *és c*) 650 keV N^+ lövedékkel, 10 különböző megfigyelési szögeknél. Az színek а könnvebb 10 áttekinthetőséget segítik.



A távoli ütközésekhez hasonlóan – ahol az iontöltés volt a meghatározó – a közeli ütközéseket is vizsgálhatjuk a Bohr-Sommerfeld paraméteren keresztül. Első közelítésban az iontöltés helyére a magtöltést írva, a k_{BS} értéke a lehetséges legerősebb perturbációt számszerűsíti. Proton lövedék esetén így visszakapjuk a fenti k_{BS,H+,max}=k_{BS,H+}=0,16 értéket. Hélium esetén a perturbáció erősségét jelző BohrSommerfeld paraméter lehetséges legmagasabb értéke a $q_{mag,He}=2+$ magtöltés miatt $k_{BS,He+,max}=2k_{BS,He+}=1,26$. A $q_{mag,N}=7+$ magtöltéssel rendelkező nitrogénre pedig $k_{BS,N+,max}=7k_{BS,N+}=5,18$ értéket kapunk. Az olyan közeli ütközések valószínűsége azonban, melyekben a céltárgy elektronjára a csupasz mag potenciálja hat, elhanyagolható. Ettől sokkal valószínűbb hogy a kölcsönhatásban egy iontöltés és magtöltés közé eső ún. *effektív töltés* hat mellyel jól közelíthetjük a perturbáció erősségét.

Elektronokkal rendelkező lövedékek esetén, közeli ütközésekben a lövedék és céltárgy elektronjainak Coulomb-kölcsönhatása is növelheti az elektronemisszió hatáskeresztmetszetét, mely folyamatot a [48, 49, 51] irodalmakban tanulmányozták.

A fent leírt közeli ütközések képben a céltárgy többszörös ionizációja is jelentős járulékot adhat az elektronemisszióhoz. Az egyszeres és többszörös ionizációs hatáskeresztmetszeteknek a *b* impakt paraméter függését a CTMC eredményeken keresztül a 4.4.3 alfejezetben mutatom be. Elöljáróban annyit, hogy bár a magasabb ionizációs fokok járulékai a H⁺ lövedéktől az N⁺ lövedékig növekednek, a vizsgált ütközési rendszerek mindegyikében az egyszeres ionizáció messze domináns folyamat volt.

Hélium és nitrogén lövedékekkel bombázva a célmolekulákat a céltárgy ionizációjából származó elektronok mellett a lövedék ionizációja (elektron vesztése, EL) is jelentős járulékot ad az elektronemisszióhoz. Noha a céltárgy és lövedék ionizációt méréseinkben nem tudtuk különválasztani, a kapott spektrumok CTMC és CDW-EIS eredményekkel való összevetése információt adott a két folyamat járulékáról, melyet később, a 4.3.4 alfejezetben részletesen tárgyalok.

A 4.27 ábrán látható, különböző lövedékekkel indukált elektronemissziós spektrumok között további különbség figyelhető meg a kis energiás elektronok tartományában. Míg a H⁺ lövedék esetén ezen kis energiás elektronok szögeloszlása izotrop, a He⁺ és N⁺ lövedékekkel kapott elektronemisszió hatáskeresztmetszete a 3-25 eV energiatartományában a megfigyelési szög csökkenésével növekszik. Ez az előrehátra asszimmetria az elektronemisszióban két okra vezethető vissza:

- 1. Mivel az iontöltés mindhárom lövedék esetén egységnyi, az aszimmetria részben a nehezebb lövedék kisebb sebességének tulajdonítható, mely miatt a többcentrumú elektronemisszió szerepe megnő.
- 2. Az aszimmetria másik forrása a lövedék elektronvesztése (EL). A mozgó lövedékről származó elektronok laboratóriumi koordináta rendszerben főként előre irányba emittálódnak, megnövelve ezzel a θ <90° megfigyelési szögek irányában az elektronemissziót.

A fentiekben bemutatott megfigyelések nem csupán a víz céltárgyra igazak. Adott energiájú H^+ , He^+ és N^+ lövedékekkel bombázva CH_4 és N_2 célmolekulákat, a kapott kétszeresen differenciális elektronemissziós hatáskeresztmetszetek (melyeket itt nem prezentáltam) ugyanilyen viselkedést mutatnak.

4.3.3 A Wilson és Toburen által bevezetett skálázási szabály kiterjesztése

Az azonos lövedékekkel, de különböző céltárgyakkal kapott kétszeresen differenciális hatáskeresztmetszetek közti különbségek főként a céltárgy molekulákra jellemző sajátosságokból származnak. Különösen igaz ez az elektronnal nem rendelkező proton lövedékkel mért spektrumokra, melyeket teljes egészében a céltárgy ionizációjából származó elektronok alkotnak.



4.28 ábra: Elektronemissziós hatáskeresztmetszetek 90° megfigyelési szögnél, 1 MeV H^++H_2O , 1 MeV H^++CH_4 , és 1 MeV H^++N_2 ütközési rendszerekben (az ábra a) része). Az ábra b) részében ugyanezen spektrumokat skáláztam (elosztottam) a gyengén kötött elektronok számával (n_e). Az ábra az elektronspektrumoknak csak a zavaró tényezőktől mentes 25-300 eV energiatartományát mutatja.

A 4.28 ábra a) része a víz, metán és nitrogén molekulák esetében, 1 MeV H⁺ bombázással kapott elektronemissziós hatáskeresztmetszeteket mutatja 90° megfigyelési szögnél. (Az ábrán az elektronspektrumoknak csak a 25-300 eV energiatartományát tüntettem fel, ahol az ütközési rendszerre jellemző sajátosságok, pl.: PCI, Auger folyamatból, és kéttest ütközésből származó csúcsok, nem jelennek meg "zavaró tényezőként".) Az ábráról azonnal szembetűnik, hogy a három céltárggyal kapott hatáskeresztmetszetek közül kettő, a H_2O és CH_4 molekulákkal kapottak gyakorlatilag egybeesnek. Az N_2 céltárgy-molekulával kapott hatáskeresztmetszetek sem térnek el jelentősen az előző kettőtől, bár azok görbéje mindenütt a H_2O és CH_4 céltárggyal kapottak fölött fut. A hatáskeresztmetszetek hasonlóságát a következőkkel magyaráztam:

- A három molekula első ionizációs energiája közel esik egymáshoz: E¹_{i,H20}=12,6 eV, E¹_{i,CH4}=12,7 eV és E¹_{i,N2}=15,6 eV. Ahogy azt a későbbiekben látni fogjuk, mind a CTMC, mind a CDW-EIS számolások azt mutatják, hogy ütközési rendszereinkben a céltárgy egyszeres ionizációja dominál. Az első ionizációs energiák hasonlósága így részben magyarázza a hatáskeresztmetszetek hasonlóságát.
- A lazán kötött (vegyérték) elektronok száma a H₂O és CH₄ molekulában egyenlő, azaz 8, a nitrogén molekula vegyérték elektronjainak a száma ennél kettővel több, azaz 10.

Az 1. pontban megadott ionizációs energiák apró különbsége csak a víz és metán molekulákkal mért ionizációs hatáskeresztmetszetek egybeesését magyarázza. A nitrogén molekula magasabb első ionizációs energiája a kísérletekben tapasztalt hozambeli eltéréssel éppen ellentétesen hatna. A 2. pont azonban alátámasztja a céltárgy-molekulával kapott magasabb elektronemissziós nitrogén hatáskeresztmetszeteket. Ez utóbbi pont egybevág a W. E. Wilson és L. H. Toburen [52] által csupán szénhidrogénekre megfogalmazott skálázási szabállyal, mely szerint elektronemissziós hatáskeresztmetszetek szénhidrogének esetén arányosak az (skálázhatók) a gyengén kötött elektronok számával. A fenti három molekulára elvégezve a skálázást azt tapasztaltam, hogy a Wilson és Toburen által megfogalmazott szabály kiterjeszthető a víz és nitrogén célmolekulákra is. A skálázás eredményét a 4.28 ábra b) része szemlélteti. (Megjegyzem, hogy a szabályt a He⁺ és N⁺ lövedékek esetén mind a céltárgyról, mind a lövedékről származó elektronemisszióra érvényesnek találtam. Ez azt sugallja, hogy a skálázási szabály a lövedék elektronvesztésére is érvényes.)

4.3.4 Az elektronemisszió vizsgálata CTMC és CDW-EIS számolások eredményein keresztül

A víz és metán céltárgyakkal kapott kísérleti eredményekből meghatározott elektronemissziós hatáskeresztmetszetek további elemzését klasszikus CTMC szimuláció, és tisztán kvantummechanikai CDW-EIS számolások eredményeit

felhasználva végeztem. Bemutatom, hogy a két elméleti módszert sikerrel alkalmaztuk kísérleti eredményeinek leírására.

A H⁺+H₂O és H⁺+CH₄ ütközési rendszerekre mind a CTMC, mind a CDW-EIS számolások eredményei jól egyezést mutatnak a mérési adatokból kapott kétszeresen differenciális hatáskeresztmetszetekkel. Ezt szemlélteti a 4.29 ábra, melvnek a) része a víz céltárggyal, b) része a metán céltárggyal kapott eredményeket mutatja az elméleti eredményekkel együtt. A számolások mind a spektrumok alakját, mind a kéttest ütközésekből származó csúcsokat jól reprodukálják. A kísérleti eredmények 10 eV elektron energia alatt szisztematikusan az elméleti jóslatok alatt futnak. Mivel itt a mért hatáskeresztmetszetek némileg kisebbek a referenciának tekintett adatoknál is [52], az elméletektől való eltérést a mérések apró, szisztematikus hibájának tulajdonítjuk (pl.: apróbb töltődések). A CTMC eredmények víz és metán céltárgy esetén is tökéletesen egybeesnek a kísérleti hatáskeresztmetszetekkel. A H⁺+H₂O ütközési rendszerre kapott kísérleti eredményekkel a CDW-EIS eredmények is jó egyezést mutatnak. A metán céltárggyal kapott kísérleti adatok azonban, θ <45° megfigyelési szögekben, 100 eV elektronenergia fölött gyengén elérnek a CDW-EIS módszerrel számolt eredményektől. Emellett, itt a két elméleti eredmény is jelentősen különbözik egymástól, mely oka mindezidáig tisztázatlan. Általánosan elmondható, hogy a két különböző elméleti eredmény jó egyezést mutat egymással is: a számolt görbék a legtöbb szögnél széles energiatartományában együtt fut mindkét céltárgy esetén.

A részlegesen lecsupaszított, elektronokkal rendelkező He⁺ és N⁺ lövedékek esetén az elméletekben számításba kellett venni a lövedék elektron vesztéséből (lövedék ionizáció) származó elektronokat is, melyek szintén járulékot adnak a mért elektronemisszióhoz. A He⁺+CH₄ ütközésekben kísérleti, valamint elméleti úton meghatározott hatáskeresztmetszeteket a 4.30 ábra mutatja. Ezen a kísérleti differenciális hatáskeresztmetszeteket olyan elméleti eredményekkel hasonlítom össze, melyben a céltárgy és lövedék ionizációját különválasztották. Az ábra a) részén átható, hogy a klasszikus módszerrel számolt hatáskeresztmetszetek itt is jól egyeznek mérési eredményeinkkel. Bár a számolás szerint a céltárgy ionizáció a meghatározó, a lövedék elektron vesztése is jelentős járulékot ad az elektronemissziós hatáskeresztmetszetekhez, mely $\theta \ge 90^\circ$ megfigyelési szögeknél válik igazán kifejezetté.

Mind a CTMC, mind pedig a 4.30 ábra b) részén látható CDW-EIS eredmények szerint a lövedék elektron vesztése a legnagyobb járulékot a 80-300 eV energiatartományban adja. A CDW-EIS eredmények azonban mind a négy vizsgált megfigyelési szögnél túlbecsülik a lövedék ionizációjának járulékát, mely valószínűleg az árnyékolt Coulomb-potenciál erősségének gyenge túlbecsléséből származik.



4.29 ábra: Az ábra a) része a H^++H_2O , b) része a H^++CH_4 ütközésekben kapott kétszeresen differenciális hatáskeresztmetszeteket mutatja az elektron kinetikus energiájának függvényében, a megadott szögeknél. A körök (\circ) a mérésekből kapott hatáskeresztmetszetek, a lila folytonos vonal a CTMC szimuláció, a zöld szaggatott vonal pedig a CDW-EIS számolás eredménye. A mérés hibáját csak néhány nagyenergiás pontnál tüntettem fel, ahol az a statisztikus hiba növekedése miatt a szimbólum méreténél nagyobbá válik.

A céltárgy ionizáció dominanciáját a gyengén kötött elektronok számával és az ionizációs energiák különbségével magyaráztuk. A metán molekulában a 2a₁ és 1t₂ molekulapályák ionizációs energiái sorban $E_{i,2a1} \approx 22,9$ eV, és $E_{i,1t2} \approx 14,4$ eV. Eszerint a metán molekula gyengén kötött elektronjai közül bármelyiknek kisebb az ionizációs potenciálja, mint a He⁺ lövedék egyetlen elektronjának (E^(II)_{i,He+} \approx 54,4 eV), mely magyarázza a céltárgy ionizáció nagy hozamát a lövedék ionizációhoz képest.



4.30 ábra: A He^++CH_4 ütközésekben kapott kétszeresen differenciális hatáskeresztmetszetek az ütközésből kirepülő elektron kinetikus energiájának függvényében. Az ábra a) részén a CTMC módszerrel kapott céltárgy ionizációs – piros, pontozott vonal –, és teljes (céltárgy+lövedék) ionizációs – kék, folytonos vonal – hatáskeresztmetszetek láthatók. A b) rész ugyanilyen jelölésrendszerben mutatja a CDW-EIS módszerrel kapott céltárgy, és teljes ionizációs hatáskeresztmetszeteket. A körök (\circ) az ábra mindkét részében a mérési eredményeket jelölik.

A proton lövedékkel kapott spektrumokhoz hasonlóan, 10 eV-nél kisebb elektron energiákon az elméletek hélium-ion lövedék esetén is túlbecsülik a mérésekben kapott hatáskeresztmetszeteket. Most azonban ez a különbség a kísérlet és elmélet között csak hátraszögekben figyelhető meg, mely arra enged következtetni, hogy az elméletek alábecsülik a többcentrumú elektronemisszió szerepét a szóban forgó ütközési rendszerben.



4.31 ábra: Az N^++H_2O ütközésekben kapott kétszeresen differenciális hatáskeresztmetszetek az elektron kinetikus energiájának függvényében. Az ábra a) részén a CTMC módszerrel kapott céltárgy ionizációs – piros, pontozott vonal –, és teljes (céltárgy+lövedék) ionizációs – kék, folytonos vonal – hatáskeresztmetszetek láthatók. A b) rész ugyanilyen jelölésrendszerben mutatja a CDW-EIS módszerrel kapott céltárgy, és teljes ionizációs hatáskeresztmetszeteket. A körök (\circ) az ábra mindkét részében a mérési eredményeket jelölik.

Nitrogén-ion bombázás esetén azt várjuk, hogy az N⁺+H₂O, és az N⁺+CH₄ ütközésekből származó elektronemissziós hatáskeresztmetszetekben a lövedékionizáció járuléka jóval fölülmúlja a He⁺+CH₄ ütközésben tapasztaltakat. A feltevést arra alapozzuk, hogy a nitrogén-ion lövedék gyengén kötött (vegyérték) elektronjainak a száma 4, valamint a nitrogén atom második ionizációs energiája (E^(II)_{i,N+}≈29,6 eV) körülbelül fele a He atoménak. Noha feltevésünket mindkét elméleti módszer eredménye alátámasztja, azaz a lövedék elektron vesztése itt már összemérhető a céltárgy ionizációjából származó elektronok hozamával, a két módszer a lövedék elektron vesztéséből származó elektronok energiaeloszlására más-más eredményt ad (lásd 4.31 ábra). A CTMC módszer 10 és 100 eV elektronenergia között egy elektron vesztési "csúcsot" jelez, míg a CDW-EIS módszerrel a lövedék ionizációjából származó elektronok 3 -tól 700 eV-ig közel konstans járulékot adnak. A kísérleti eredmények szerint a lövedék elektron vesztését a CTMC módszer írja le jobban. Így a módszerrel számolt teljes elektronemissziós hatáskeresztmetszetek, a H⁺ és He⁺ lövedékekre kapott jó egyezésüket a kísérleti adatokkal, N⁺ lövedék esetén is megőrzik.



4.32 ábra: Az N^++CH_4 ütközésekben kapott kétszeresen differenciális hatáskeresztmetszetek az elektron kinetikus energiájának függvényében. Az ábra a kísérleti eredményeket a CDW-EIS módszerrel kapott céltárgy ionizációs – piros, pontozott vonal –, és teljes (céltárgy+lövedék) ionizációs – kék, folytonos vonal – hatáskeresztmetszetekkel hasonlítja össze. A kísérleti eredményeket a körök (\circ) jelölik.

A CDW-EIS módszerrel kapott eredmények azonban ~100 eV elektronenergia alatt túlbecsülik mind a céltárgy, mind a teljes ionizációs hatáskeresztmetszeteket. 100 eV elektronenergia fölött pedig a CDW-EIS görbék a kísérleti adatok alá esnek, és az elektronenergia növekedésével egyre nagyobb mértékben alábecsülik azokat. A CDW-EIS eredményeknek ugyanez a viselkedése figyelhető meg az N^++CH_4 ütközési rendszerben is, melyet a 4.32 ábra szemléltet.



4.33 ábra: A 46 keV/a.u. N^+ +H₂O ütközésre CTMC módszerrel kapott céltárgy ionizációs hatáskeresztmetszetek osztva a B1 számolásban céltárgy ionizációs eredményekkel. A pontozott vonal 20°, a pontozott-szaggatott vonal 45°, a folytonos vonal 160° megfigyelési szögben számolt hatáskeresztmetszet arányokat jelöl.

A 4.31 és 4.32 ábrákat közelebbről megvizsgálva, a kísérleti adatokban 100 eV elektronenergia fölött egy kidudorodás látható a spektrumokban. A struktúra 90° megfigyelési szög fölött is megmarad, sőt, 160°-ban a legjobban megfigyelhető. A struktúrát a klasszikus számolás jól visszaadja, míg a magasabb rendű folyamatokat csak részben tartalmazó kvantummechanikai módszer egyáltalán nem reprodukálja. Ez arra enged következtetni, hogy a 100 eV energia fölötti kiemelkedés egy olyan magasabb rendű folyamatból származik, mely nagy energiájú elektronokat produkál. Ilyen folyamat a kilökött elektronok többszörös szóródása a céltárgy és az ionizált lövedék Coulomb-terében, melyet Fermi-gyorsításnak [41, 42, 45, 115] is szokás nevezni.

A Fermi gyorsítás jelenlétét a mért spektrumokban az elméleti hatáskeresztmetszeteket felhasználva indirekt módon igazoltam. Adottak voltak a 46 keV/ate. N⁺+H₂O ütközési rendszerre CTMC módszerrel kapott céltárgy ionizációs eredmények, melyek bizonyítottan tartalmazzák az elektronok többszörös szóródását is [41, 42, 45, 115], és jól egyeznek a mért eredményekkel. Elsőrendű Born-közelítést (B1) alkalmazva szintén víz céltárgyra kiszámoltuk a nitrogén lövedékkel megegyező

sebességű, 46 keV/ate. H⁺ lövedékkel indukált ionizációs hatáskeresztmetszeteket is. Utóbbiak nem tartalmaznak magasabb rendű folyamatokat. A két számolt görbét elosztva egymással, többszörös szóródásokat tartalmazó eredményeket osztunk, azokat nem tartalmazókkal. Továbbá, mivel a B1 számolásokat nem N⁺, hanem H⁺ ionra végeztük, a $\sigma_{\text{CTMC}}/\sigma_{\text{B1}}$ arány a magasabb rendű folyamatok mellett tartalmazza azon hatásokat is, melyek a nitrogénnel kapott spektrumokban a csupasz, egységnyi töltéstől vett eltérésből származnak. A kapott $\sigma_{\text{CTMC}}/\sigma_{\text{B1}}$ arányok láthatók a 4.33 ábrán, 20°, 45° és 160° megfigyelési szögnél. Az ábráról leolvasható, hogy:

- 1. A legegyszerűbb képben, amikor is a kis energiás elektronemissziót tisztán az iontöltés határozza meg, a 0-30 eV energia közötti $\sigma_{\text{CTMC}}/\sigma_{\text{B1}}$ aránynak szögfüggetlennek és egyhez közelinek kellene lennie, amennyiben az ütközést egycentrumúnak (céltárgy) lehetne tekinteni. A 4.33 ábrán a kis energiás arányoknak egységnyitől való erős eltérése a lassú lövedék vonzása miatt fellépő, kétcentrumú elektronemisszió következménye, mely előre szögekben (θ <90°) egynél jelentősen nagyobb, hátraszögekben (θ >90°) pedig jelentősen kisebb elektronhozamot ad.
- 2. 30 eV fölött pedig az arány folyamatosan növekszik, mivel itt nő az egyre közelebbi ütközések aránya, melyekben a nitrogén ion lövedék egyre kevésbé árnyékolt. Mindezeken túl, 30 eV elektronenergia fölött a $\sigma_{\text{CTMC}}/\sigma_{\text{B1}}$ arányokban két csúcs is megjelenik. A 20° és 45° megfigyelési szögekben ~90 eV és ~50 eV elektronenergia körül látható csúcs a kéttest ütközésből származó elektronoktól származik. A csúcs 0°-ban vett 100,2 eV értékű (a (7) -es kifejezéssel számolt) nominális energiája 20°-ban 88,5 eV-re, 45°-ban pedig 50,1 eV-re csökken.
- 3. A $\sigma_{\text{CTMC}}/\sigma_{\text{B1}}$ arányban hátraszögekben megjelenő az ábrán a 160°-os arányokban látható ~100 eV-es csúcs a kilépő elektronok céltárgy magon történő hátrafelé szóródásának a következménye (angolul: target backscattering).
- A ~400 eV körüli csúcsot Fermi gyorsítási folyamatból származó elektronokként azonosítottuk. 20° és 45° megfigyelési szögekben P-T-P szóródásként, 160°-ban P-T-P-T folyamatként azonosítottam.

Mivel a CTMC eredmények jól egyeznek a mérésekből kapott hatáskeresztmetszet spektrumokkal, a CTMC által adott céltárgy ionizáció járulékot ekvivalensnek tekintettem a kísérleti céltárgy ionizáció járulékkal. Így a két különböző elméleti módszer által adott hatáskeresztmetszet-energiafüggések elemzésével indirekt módon igazoltam a Fermi-gyorsítás jelenlétét spektrumainkban. Azt találtam, hogy az elektronok többszörös szóródása a céltárgy- és lövedékmagokon, valamint a Fermi-féle gyorsítási mechanizmus jelentősen megnöveli a nagy energiás elektronemisszió

hatáskeresztmetszetét. A mechanizmust jelenlétét molekulák esetén mutattam ki, ahol a céltárgyon való szóródás egy több centrumú Coulomb-potenciálon történik.

A 4.3 alfejezet összefoglalásaként elmondhatom, hogy víz, metán és nitrogén molekulákat 1 MeV H⁺, 1 MeV He⁺ és 650 keV N⁺ ion-lövedékekkel bombázva a 20° és 160° közötti megfigyelési szögtartományban mértük az ütközésből kirepülő elektronok energia és szögeloszlást. A mért spektrumokból kétszeresen differenciális elektronemissziós hatáskeresztmetszeteket határoztam meg. Azonosítottam és elemeztem a különböző ionizációs mechanizmusokból származó járulékokat a különböző ütközési rendszerek esetén. Azt találtam, hogy proton lövedéktől a nitrogén felé haladva a hatáskeresztmetszetek növekednek, és a spektrumok szerkezete is változik. Ezt a perturbáció-erősség növekedésének tulajdonítottam, mely a lövedék effektív töltésének és sebességének hányadosával arányos. Árnyékolt lövedékekre az effektív töltés az iontöltésnél nagyobb lehet, a lövedéksebesség pedig a protontól a nitrogén felé haladva csökken. Erősebb perturbáció esetén a többszörös ionizáció valószínűsége is megnő. Az árnyékolt lövedékek az ütközésekben maguk is ionizálódnak, a spektrumokban ennek járulékát is azonosítottam.

A különböző céltárgyakra kapott hatáskeresztmetszetek összehasonlításával a Wilson és Toburen által 1963-ban csupán szénhidrogénekre megállapított skálázási szabályt kiterjesztettem a H₂O és N₂ molekulákra is. Azt találtam, hogy a skálázási szabály a lövedék elektron vesztésére (lövedék ionizáció) is érvényes.

A víz és metán célmolekulákkal kapott differenciális hatáskeresztmetszetek értelmezésében CDW-EIS és CTMC elméleti modellek eredményeit is felhasználtam, melyekben a lövedék és a céltárgy ionizációjából származó elektronok járulékait is szétválasztották. Mindkét elméleti módszernél olyan fejlesztések történtek, amelyek az ionizációt a molekulapályák szintjén írják le. A CTMC módszer mindhárom lövedék esetén reprodukálja a kísérleti hatáskeresztmetszet értékeket, vagyis a lövedékről és a céltárgyról származó elektronok járulékainak összegét. A perturbatív CDW-EIS elmélet a H⁺ lövedék esetén adja a legjobb egyezést. A CDW-EIS számolások a He⁺ lövedékre vonatkozó kísérleti adatokat még viszonylag jól reprodukálják, de N⁺ lövedék esetén az eltérés már jelentős. А hatáskeresztmetszetek elektronenergia-függésének összehasonlításával kimutattam a Fermi-féle gyorsítási mechanizmus megjelenését az N^+ lövedékkel mért spektrumokban. Nagyobb (200 eV fölötti) elektronenergiákon ennek járuléka meghatározóvá válik.

A 4.3 alfejezetben saját munkámnak tekintem a mérések előkészítésében, és kivitelezésében való részvételt (saját részem a teljes munka kb. 50%-a), és a mérési eredmények kiértékelését, melyet 100%-ban én végeztem. Meghatározó szerepem volt az eredmények értelmezésében (60%), és publikálásában (70%). A CTMC és CDW-

EIS eredményekért köszönettel tartozom Dr. Sarkadi László és Dr. Gulyás László kollégáimnak. A tézispontokhoz a [2], [6], [E1] közleményeim tartoznak.

4.4 Molekulák fragmentációja

A 4.2 alfejezetben leírt módszerrel az 1 MeV H⁺+CH₄, 1 MeV H⁺+H₂O, 1 MeV He⁺+CH₄, 1 MeV He⁺+H₂O, 650 keV N⁺+CH₄ és 650 keV N⁺+H₂O ütközési rendszerekben mértük a kirepülő pozitív töltésű molekulatöredékek energia és szögeloszlását. A mért spektrumokból kétszeresen differenciális kation-fragmentációs hatáskeresztmetszeteket határoztam meg. Az alfejezet első részében ezen abszolút hatáskeresztmetszetek energiafüggésének általános jellemzőivel foglalkozom. Részletesen elemzem a különböző lövedékekkel kapott hatáskeresztmetszeteket. A vízmolekulára illesztéssel meghatározom az egyedi fragmentációs csatornák abszolút hozamait. A célmolekula ionizáltsági foka, és a fragmentációs csatornák közti kapcsolatot felhasználva az egyes fragmentációs csatornák hozamaiból meghatározom a többszörös céltárgy ionizáció hatáskeresztmetszeteit. Ezek további elemzését az ionizációt a független részecske közelítés kereteiben tárgyaló CTMC és CDW-EIS módszerek eredményein keresztül végzem.

4.4.1 A fragmentációs spektrumok általános jellemzése

A mért energia és szög szerint differenciális fragmentációs spektrumokban azonosítottam a különböző fragmentációs csatornákat. Mivel a víz [4, 5, 7, 60, 77, 116] és metán [10, 63, 64] molekulák szétesését már számos ütközési rendszerben vizsgálták (főként foton, H^+ , és nagytöltésű-ion bombázással), a csúcsok azonosításában az irodalomban megtalálható, főként szelektív módszerekkel mért KER és egyedi fragmentum energiákra támaszkodtam.

A szakirodalom részletes elemzése után az azonosítás szerint víz fragmentációs spektrumokat a következőképpen értelmeztük (lásd 4.34 ábra): A 4 eV energia alatt látható nagy csúcs tartalmazza az ionpár és iontriplett felhasadásokból származó nehéz fragmentumokat (O^{q+}, OH^{q+}). A H₂O molekula egyszeres ionizációján keresztül, az ion+semleges felhasadásokból származó alacsony energiás H⁺ fragmentumok szintén járulékot adhatnak ehhez a tartományhoz [7, 67]. Megjegyzem azonban, hogy az egyszeres ionizációból származó fragmentumok járulékait csak nagy bizonytalansággal tudtuk mérni, illetve azonosítani, melynek oka kettős: 1) Az ion+semleges felhasadásokból származó töltött fragmentumok egy részének energiája alacsonyabb,

mint az általunk mért legalacsonyabb energia ($E_{alsólimit}=0,4 \text{ eV}$). 2) A 0,4-4 eV energiatartományban (a nagy gyűjtőcsúcs tartománya) a nehéz fragmentumokat nem tudtuk egyértelműen külön választani az ion+semleges felhasadásokból származó H⁺ fragmentumoktól.



4.34 ábra: A fragmentációs csatornák azonosítása a 650 keV N^++H_2O ütközési rendszerben kapott spektrumokban. Az ábrán az adott csatornákhoz tartozó ionizációs fokokat is feltüntettem.

A víz spektrumok ~4 eV fölötti részét az ionpár és iontriplett felhasadásokból származó könnyű H⁺ fragmentumok alkotják. A különböző fragmentációs csatornákból származó protonok itt egy strukturált spektrumrészt adnak. Nem minden csúcs jelent azonban feltétlenül eltérő fragmentációs csatornát. A 4 és 7 eV közötti lapos platót, illetve a 7 és 12 eV között elhelyezkedő struktúrákat főként az OH⁺+H⁺ felhasadásból származó, de különböző KER értékekkel jellemzett egymással átfedő proton csúcsok alakítják ki [4, 7]. Wolff és munkatársai [62] szerint a 4 és 7 eV közötti platóban az OH⁺+H⁺ csatornából származó három különböző energiájú proton molekulatöredék ad egymáshoz közel eső csúcsokat. Szerintük ezek energiakülönbsége a kiindulási H₂O²⁺ molekulaion három különböző keletezési mechanizmusából ered, melyek a közvetlen kétszeres ionizáció, az egyszeres ionizációt követő Auger-folyamat, és az egyszeres

ionizációt követő autoionizáció. Megjegyzem azonban, hogy a szóban forgó energiatartományhoz elméleti jóslatok szerint további két fragmentációs csatorna adhat járulékot, melyek a következők: $H_2O^{2+} \rightarrow O^++H^++H^0$ [3, 65, 116], és $H_2O^{2+} \rightarrow O^0+H^++H^+$ [4]. A csatornák közül eddig csupán az elsőt sikerült kísérletileg kimutatni az adott energiatartományban, hozama pedig igen alacsony volt. A ~15 eV kinetikus energia fölé eső protonok a H_2O molekula erősebb perturbációja miatt kialakuló magasabb ionizációs fokokaihoz tartoznak. A H^+ fragmentumok kinetikus energiájának nagy része ekkor már a molekulatöredékek Coulomb-taszításából (Coulomb-robbanás) származik, ami miatt az egyre nagyobb ionizációs fokokhoz egyre nagyobb energiájú proton fragmentumok tartoznak.



4.35 ábra: A fragmentációs csatornák azonosítása a 650 keV N^++CH_4 ütközési rendszerben kapott spektrumokban a sok, egymáshoz közel eső fragmentum energia miatt kevésbé egyértelmű, mint víz céltárgy esetén.

A metán céltárggyal kapott fragmentációs spektrumokban – hasonlóan a vízhez – a kis energián (0,4–2 eV) megfigyelhető nagy csúcsot főként nehéz fragmentumok alkotják, kevés ion+semleges felhasadásból származó H^+ fragmentum járulékkal. A 4.35 ábra szerint azonban metán céltárgynál a ~2 eV fölötti, főként protonok alkotta régió sokkal struktúraszegényebb, mint a vízspektrumok protonok alkotta része. Itt

csupán három nagy struktúra különíthető el. A 2–4 eV közötti lapos részt az ion+semleges felhasadásból származó H⁺ ionok és H₂⁺ ionok alkotják [63]. Nagyobb energián (4–10 eV) egy asszimetrikus csúcs látható, melyet az ionpár felhasadásokból származó H⁺ fragmentumok alkotnak. Az irodalmi H⁺ fragmentum energiák [63, 64] szerint ebbe a régióba körülbelül 12 db fragmentációs csatorna esik, melyek a mi mérési módszerünkkel nem válnak külön egymástól. A csúcs fölötti 10 eV-től ~60 eVig tartó energiatartományba is számos, a metán magasabb ionizációs fokaihoz tartozó fragmentációs csatorna esik. A proton fragmentum csúcsok nagymértékű átfedése miatt a metán spektrum fragmentációs csatornákra bontása csak nagy bizonytalansággal lehetséges, az elemzés itt még folyamatban van.

4.4.2 Kis molekulák ionbombázással kiváltott fragmentációjának vizsgálata

A fragmentum emisszió a vizsgált ütközési rendszerekben izotrópnak bizonyult bármely lövedék-céltárgy kombináció esetén. Kivételt képeznek ez alól a 90° megfigyelési szögnél mért spektrumok. Ezekben a lövedék ion és a céltárgy hidrogén atomjainak közvetlen kéttest ütközéséből származó H⁺ fragmentumok a spektrum nagy energiás részéhez egy hosszan elnyúló, energiával lassan csökkenő járulékot adnak. A 4.36 ábrán a 45° megfigyelési szögnél mért spektrumokat mutatom be a H₂O és CH₄ céltárgyakra.

A fragmentációs hatáskeresztmetszetek energiafüggése a három különböző lövedék esetén jelentősen eltér egymástól mindkét céltárgy esetén. A legszembetűnőbb különbség, hogy az abszolút hatáskeresztmetszetek a proton lövedéktől a héliumon keresztül а nitrogénig növekednek. А nitrogén-ion lövedékkel kapott hatáskeresztmetszetek egy nagyságrenddel nagyobbak mint a protonnal indukáltak, bármely mért energián és megfigyelési szögnél. Ezen felül a proton lövedéktől a nitrogén felé haladva változik az egyes csatornák relatív hozama is, melyet a később bemutatott illesztésekben felhasználok az átfedő csúcsok pontosabb szétválasztásához is. Hélium és nitrogén ion lövedékek esetén, protonbombázással még nem látható újabb struktúrák is megjelennek a spektrum nagy energiás részén. Ezek a célmolekula egyre erősödő perturbációjához tartozó csatornáknak felelnek meg. A H⁺ lövedéktől az N^+ lövedék felé haladva, a proton fragmentum hozam nagy energiás részének növekedésével párhuzamosan a nehéz fragmentumok csúcsa (<~3 eV) is növekszik. Ez magától értetődő, hiszen minden egyes proton fragmentumnak megvan a nehéz töredék párja is.



4.36 ábra: A különböző lövedékekkel kapott fragmentációs hatáskeresztmetszetek összehasonlítása a) H_2O , és b) CH_4 céltárgy esetén. Az ábrán a Δ a H^+ lövedékkel, a \circ a He^+ lövedékkel, a \blacksquare a N^+ lövedékkel kapott spektrumokat jelöli.

Ahhoz, hogy a fenti kvalitatív képen túl a fragmentációs csatornákról részletesebb, kvantitatív eredményeket kapjak a spektrumokban az azonosított fragmentációs csatornákat Gauss-görbékkel illesztettem. A sok egymáshoz közeli, és átfedő H⁺ csúcs miatt (lásd a 4.4.1 alfejezetben) metán esetén – ellentétben a vízzel – a spektrum fragmentációs csatornákra történő szétválasztása csúcsok illesztésével nem volt lehetséges. Ezért az egyedi fragmentációs csatornák hozamának illesztésekkel történő vizsgálatában csupán a víz céltárggyal kapott hatáskeresztmetszetek bemutatására szorítkozom.

Az illesztést a különböző megfigyelési szögeknél kapott hatáskeresztmetszetek átlagára végeztem. Az eredményt a 4.37 ábra mutatja, külön H^+ , He^+ és N^+ lövedékre. Az illesztés során a nehéz fragmentumok 3 eV alatti "gyűjtőcsúcsát" azzal a minimális számú Gauss csúccsal illesztettem, mellyel az elérhető legjobb illeszkedés még nem romlott. Ez 3 db csúcs illesztését jelentette a 0,4-3 eV energiatartományban, melvek nem reprezentálnak egyedi fragmentációs csatornákat. A 3 eV fölötti részben, melyet az egyes fragmentációs csatornákból származó protonok alkotnak, az illesztett Gauss csúcsok mindegyike megfelel egy-egy fragmentációs csatornának. Egy kisebb csúcsot nem tudtam irodalomból ismert fragmentációs csatornához egyértelműen hozzárendelni. de intenzitásának perturbáció-erősségtől való függése alapján megállapítható, hogy háromszoros ionizációs fokhoz tartozik. Az 50 eV fölötti hatáskeresztmetszetek energiafüggésének legjobb illesztéséhez is szükség volt egy nagy energiás (E_c =58 eV), csúcs bevezetésére, melyet a magasan gerjesztett H_2O^{5+*} molekulaion bomlásából származó $H_2O^{5+*} \rightarrow O^{4+}H^+ + H^0$ csatornának tulajdonítottuk.

Az illesztésekhez a Gauss-csúcsok energiáit (csúcspozícióit, E_c) az irodalmi adatok alapján határoztam meg. Az illesztés során ezen nominális energiaértéktől maximálisan ±5% eltérést engedtem meg az illesztőprogramnak. Ennek ellenére az a csúcsok többségét az irodalmi adathoz ennél jóval közelebbi energiánál találta meg. A csúcsok félértékszélességeire (FWHM) a szakirodalomban fellelhető adatok sok esetben hiányosak, vagy nem elég pontosak. A meglevő szélességeket elemezve úgy döntöttem, hogy első közelítésben a Gasuss-görbék szélességét arányosnak tekintem a csúcspozícióval. Az arányossági tényező kezdő értékét az irodalmi adatokból kiindulva 0,4 -nek vettem. Az illesztések során azt találtuk, hogy az arányossági tényező, kisebb fluktuációk mellett, a növekvő csatorna-energiákkal fokozatosan csökken, a kezdeti 0,4-ről 50 eV-nél 0,2-re. Az iterációval végül elértük, hogy mindhárom lövedék esetén ugyanazokkal a csúcspozíciókkal (irodalmi értékek) és félértékszélességekkel jellemzett Gauss-függvényekkel illesztettük meg a spektrumokat. Megjegyzem, hogy, bár az arányossági tényező a csúcsenergia növekedésével csökken, a csúcsok abszolút szélessége folyamatosan növekszik. Ennek legvalószínűbb oka, hogy a magasabb ionizációs fokhoz tartozó csatornáknál a gerjesztett állapotok száma és a hozzájuk tartozó energiatávolságok nőnek, ami a csúcsok kiszélesedésével jár.

A gerjesztések szerepe a csúcsok kiszélesedésében már kis fragmentum energiákon is megmutatkozik. Az OH⁺+H⁺ felhasadásból származó proton fragmentumok például széles energiatartományban (4-12 eV) adnak járulékot a spektrumokhoz.



4.37 ábra: A szövegben részletesen leírt módszerrel illesztett fragmentációs csatornák. Az ábra a) része az 1 $MeVH^++H_2O$, b) része az 1 $MeV He^+ + H_2O$, c) része a 650 keV N^+ +*H*₂*O* ütközési rendszerben kapott hatáskeresztmetszetek illesztési eredményét mutatja. A mért adatokat körök (°) jelölik. Α nyilak és vonalak Wolff szagaatott а és munkatársai [62] által szimulált fragmentum energiákat jelölik. Betűjelzéseik (a, b, c...) megegyeznek a 2.8 ábrán látható (2.3.7 alfejezet) jelölésekkel. Az α , β , γ , δ jelölések a 2.8 ábra felső részén nem jelölt, de alsó részén látható nCTMC szimulációból kapott, az illesztés szempontjából releváns energiákat jelölik.

Energia/Töltés (eV)

Az illesztés eredményeit a három különböző lövedékkel indukált spektrumokra a 4.3 táblázat foglalja össze. Az 5 és 12 eV energiatartományban megjelenő OH^++H^+ csatornától különböző, esetlegesen járulékot adó, kis hozamú fragmentációs csatornákat zárójelben jelöltem. Hozamuk a legtöbb irodalom szerint jóval alatta marad az OH^++H^+ felhasadásának, teljes elhanyagolásokat azonban mégsem tartottam reálisnak.

4.3 táblázat: A fragmentációs csatornák Gauss-csúcsokkal végzett illesztésének eredménye. Az egyes csatornákhoz tartozó csúcspozíció és FWHM értékek mindhárom lövedék esetén azonosak. A kapott hatáskeresztmetszetek az egyes csatornákra a σ_{H^+} , σ_{He^+} és σ_{N^+} oszlopokban láthatók a három különböző lövedék esetén.

Fragmentációs	Ec	FWHM	σ _{H+} (cm ²)	σ _{He+} (cm ²)	σ _{N+} (cm ²)	Ref.
csatorna	(eV)	(eV)				sz.
Nehéz (OH ^{q+} ; O ^{q+})	0,89	0,36	2,55±0,15×10 ⁻¹⁹	4,33±0,41×10 ⁻¹⁹	9,16±0,31×10 ⁻¹⁸	[4]
Nehéz (OH ^{q+} ; O ^{q+})	1,25	0,66	8,18±0,25×10 ⁻¹⁹	6,19±0,08×10 ⁻¹⁸	5,39±0,06×10 ⁻¹⁷	[4]
Nehéz (OH ^{q+} ; O ^{q+})	1,83	0,74	4,75±0,24×10 ⁻¹⁹	4,80±0,08×10 ⁻¹⁸	3,87±0,06×10 ⁻¹⁷	[4]
$H_2O^+ \rightarrow OH^0 + H^+$	2,54	1,23	8,66±0,27×10 ⁻¹⁹	6,50±0,08×10 ⁻¹⁸	4,21±0,05×10 ⁻¹⁷	[7]
$H_2O^{2+} \rightarrow OH^+ + H^+$	3,87	1,68	1,36±0,03×10 ⁻¹⁸	1,07±0,01×10 ⁻¹⁷	3,82±0,06×10 ⁻¹⁷	[7]
$\begin{array}{c} H_2 O^{2+} \to O H^+ + H^+ \\ (H_2 O^{2+} \to O^+ + H^+ + H^0) \end{array}$	5,46	2,45	1,02±0,05×10 ⁻¹⁸	1,02±0,02×10 ⁻¹⁷	3,40±0,1×10 ⁻¹⁷	[4, 7]
$ \begin{array}{c} H_2 O^{2^+} \rightarrow O H^+ + H^+ \\ (H_2 O^{2^+} \rightarrow O^0 + H^+ + H^+; \\ H_2 O^{2^+} \rightarrow O^+ + H^+ + H^0) \end{array} $	6,63	2,83	9,51±0,46×10 ⁻¹⁹	1,25±0,02×10 ⁻¹⁷	4,93±0,1×10 ⁻¹⁷	[4, 7]
$H_2O^{2+} \rightarrow OH^+ + H^+$	8,89	3,50	3,46±0,23×10 ⁻¹⁹	5,44±0,1×10 ⁻¹⁸	2,40±0,07×10 ⁻¹⁷	[4, 116]
$H_2O^{2+} \rightarrow OH^+ + H^+$	11,94	4,22	2,15±0,19×10 ⁻¹⁹	5,35±0,1×10 ⁻¹⁸	3,40±0,08×10 ⁻¹⁷	[4, 116]
$H_2O^{2+} \rightarrow O^+ + H^+ + H^0$	14,93	5,33	2,37±0,2×10 ⁻¹⁹	6,27±0,14×10 ⁻¹⁸	3,47±0,11×10 ⁻¹⁷	[7, 116]
$H_2O^{3+} \rightarrow O^+ + H^+ + H^+$	17,83	6,11	8,76±1,23×10 ⁻²⁰	7,77±0,11×10 ⁻¹⁸	7,34±0,10×10 ⁻¹⁷	[7, 65]
$H_2O^{3+} \rightarrow ?$	23,24	5,30	1,91±0,34×10 ⁻²⁰	1,51±0,05×10 ⁻¹⁸	2,42±0,06×10 ⁻¹⁷	-
$H_2O^{3+} \rightarrow O^{2+} + H^+ + H^0$	27,30	6,60	9,14±4,39×10 ⁻²²	1,72±0,04×10 ⁻¹⁸	3,14±0,06×10 ⁻¹⁷	[7, 6]
$H_2O^{4+} \rightarrow O^{2+} + H^+ + H^+$	32,52	8,82	-	8,53±0,28×10 ⁻¹⁹	3,17±0,06×10 ⁻¹⁷	[7, 5]
$H_2O^{4+} \rightarrow O^{3+} + H^+ + H^0$	40,36	12,75	-	1,43±0,11×10 ⁻¹⁹	1,99±0,05×10 ⁻¹⁷	[6]
$H_2O^{5+} \rightarrow O^{3+} + H^+ + H^+$	48,58	10,05	-	-	3,32±0,22×10 ⁻¹⁸	[5]
$H_2O^{5+} \rightarrow O^{4+} + H^+ + H^0$	58,22	11,67	-	-	1,65±0,09×10 ⁻¹⁸	-

Az egyedi fragmentációs csatornákra történő illesztéssel meghatározott hatáskeresztmetszetek immár számszerűen mutatják a spektrumok kvalitatív összehasonlításánál már leírtakat. Az egyes ionizációs fokokhoz tartozó csatornáknak az illesztett görbékből származtatott, súlyozott átlagenergiái jól egyeznek a Wolff és munkatársai [62] által nCTMC módszerrel meghatározott megfelelő elméleti H⁺ fragmentum energiákkal. Érdekes módon, az általuk kapott diszkrét "csúcsenergiák" (lásd a 2.9 ábrát a 2.3.7 alfejezetben, és a 4.37 ábrát jelen alfejezetben) nagyjából

egybeesnek a mi spektrumaink domináns csúcsaival. Ugyanakkor a 6-15 eV fragmentum-energia tartományban jelentkező, mind az irodalomban, mind a mi méréseinkben megjelenő csatornákról a Wolff és munkatársai által használt elméleti módszer nem ad számot.

Az illesztéssel kapott kvantitatív információk alapján elmondhatjuk, hogy a vízmolekula kétszeres ionizációjához és alacsony gerjesztett állapotaihoz tartozó OH^+ + H^+ csatorna hozama messze a legnagyobb, bármely lövedék esetén. A spektrumok nagy energiás szakasza mindenütt meredek eséssel végződik. Proton lövedék esetén az $O^{2+}+H^++H^0$, hélium ion lövedéknél a $O^{3+}+H^++H^0$, nitrogén lövedéknél pedig az $O^{4+}+H^+$ + H^0 csatorna tartozik a legnagyobb energiájú H^+ fragmentumokhoz. A proton lövedéktől a nitrogén felé haladva egyre nagyobb ionizációs fokokhoz tartozó csatornák jelennek meg, és a három fragmentumra történő szétesés aránya növekszik. Ez is jelzi, hogy bár mindhárom lövedék töltése egységnyi volt, a perturbáció a nitrogén felé haladva jelentősen erősödik (lásd még a 4.3.2 alfejezetet). A perturbáció erősödésével tehát nő a fragmentáció hozama, és ezen belül nő a többszörös ionizációk súlya. Ez a következő alfejezet témája.

4.4.3 A vízmolekula többszörös ionizációjának vizsgálata

Már az elektronspektrumok vizsgálatánál látszott, hogy a többszörös ionizáció járuléka proton lövedék esetén sem hanyagolható el (4.3.2 alfejezet). A fragmentumok többsége a molekula többszörös ionizációjából származik. Jól mutatja ezt a 4.3 és 4.4 táblázat. Ezekben a H₂O molekula vizsgált fragmentációs csatornáinak mindegyikét egyértelműen hozzárendeltük a molekula valamely ionizációs fokához. Ha feltételezzük, hogy a többszörösen ionizált vízmolekulák közel 100%-a disszociál (ami az irodalmi adatok alapján reális hipotézis), a fragmentációs spektrumokból többszörös ionizációs hatáskeresztmetszeteket származtathatunk. Ezeket a hatáskeresztmetszeteket természetesen csak azokból az ionizációs eseményekből határozhatjuk meg, melyek a molekula széteséséhez vezetnek. A legfontosabb korlát, hogy az egyszeresen ionizált vízmolekulák disszociációjának valószínűsége messze 100% alatt marad, ezért az egyszeres ionizáció hatáskeresztmetszete a fragmentációs spektrumokból nem határozható meg. A 4.4.1 fejezet elején tárgyalt kísérleti korlátok miatt pedig, nem tudjuk jó felbontással és jó hatásfokkal vizsgálni a 2 eV alatti energiatartományban érkező ion-fragmentumokat. Ez utóbbi azonban víz esetén nem jelent komoly korlátozást, mert a töltött fragmentumok egyike többszörös ionizáció esetén többnyire egy proton. Így, a 4.4.2 alfejezet 4.3 táblázatában bemutatott, egyedi fragmentációs csatornákra kapott hatáskeresztmetszetek ionizációs fokonként való felösszegzésével

meghatározhatjuk a többszörös ionizációs hatáskeresztmetszetek túlnyomó többségét. Ennek eredményét mutatja a 4.4 táblázat.

A 4.3 és 4.4 táblázatból szembetűnhet, hogy a kétszeresen ionizált vízmolekulák egy jelentős része csupán két részre (ion párokra) hasad, míg a magasabb ionizációs fokokhoz tartozó csatornák mindegyikében a molekula három részre esik szét. Erősödő perturbáció esetén már több molekulapálya sérülhet egyszerre, és az oxigén többszörös ionizációja is egyre valószínűbb. Szemléletünk is azt sugallja, hogy mindkét esetben nőhet a három ionra történő szétesés valószínűsége.

4.4 táblázat: A fragmentációs csatornák illesztésével kapott többszörös céltárgy-ionizációs hatáskeresztmetszetek víz céltárgyra a három különböző lövedék esetén.

Ionizációs fok	Vonatkozó fragmentációs csatornák	σ _{H+} (cm ²)	σ _{He+} (cm ²)	σ _{N+} (cm ²)
2+	$OH^+ + H^+$ $O^+ + H^+ + H^0$ $(O^0 + H^+ + H^+)$	4,12±0,08×10 ⁻¹⁸	5,04±0,03×10 ⁻¹⁷	2,14±0,02×10 ⁻¹⁶
3+	$O^+ + H^+ + H^+$ $O^{2^+} + H^+ + H^0$	1,08±0,13×10 ⁻¹⁹	1,10±0,01×10 ⁻¹⁷	1,29±0,01×10 ⁻¹⁶
4+	$O^{2+}+H^++H^+$ $O^{3+}+H^++H^0$	-	9,96±0,30×10 ⁻¹⁹	5,16±0,07×10 ⁻¹⁷
5+	$O^{3^+}+H^++H^+$ $O^{4^+}+H^++H^0$	-	-	4,97±0,20×10 ⁻¹⁸

A legnagyobb energiájú H⁺ fragmentumok és a hozzájuk tartozó fragmentációs csatornák alapján megadhattam a H₂O molekula legmagasabb ionizáltsági fokát. Erre 1 MeV H⁺ lövedék esetén q_{max} =3+, 1 MeV He⁺ esetén q_{max} =4+, és 650 keV N⁺ lövedék esetén q_{max} =5+ adódott. Nitrogén lövedék esetén a fragmentációs spektrum alakja és a vízmolekula legmagasabb ionizáltsági foka alig különbözik a mások által lassú, nagy töltésű lövedékekkel mért spektrumoktól [6, 116]. A magas ionizációs fokok megjelenése – a 4.3.2 alfejezetben leírtakhoz hasonlóan – a q_{eff}/v Bohr-Sommerfeld paraméteren keresztül magyarázható: a H⁺-tól az N⁺ felé haladva nő az effektív töltés közeli ütközésekben, és ugyanakkor csökken a lövedék sebessége.

A befogási folyamat nélkül tekintett, közvetlen többszörös ionizáció (i) szerepét a CTMC szimuláció eredményeként kapott bP(b) görbék is megerősítik. Ezek impakt (ütközési) paraméter függését mutatja a 4.38 ábra külön proton- és nitrogénionbombázásra. Mindkét esetben az egyszeres céltárgy ionizáció dominál. A H⁺ lövedékkel kapott egyszeres ionizáció impakt paraméter tartományát (0<*b*<3,5) összehasonlítva az N⁺ lövedékével azt találjuk, hogy nitrogén bombázás esetén az egyszeres ionizációnak egy igen széles impakt paraméter tartományban (1<*b*<7,5) nagy a valószínűsége. Csökkenő ütközési paramétereknél a perturbáció erősödik, az ionizációs valószínűségek nőnek. A többszörös ionizáció ütközési paraméter függése azonban más jellegű proton és nitrogén lövedék esetén. Míg H⁺ bombázásnál a többszörös ionizáció valószínűsége mindenütt alatta marad az egyszeres ionizációénak, nitrogén-ion bombázás esetén az impakt paraméter csökkenésével nő az effektív töltés és egyre magasabb ionizációs fokok válnak dominánssá. Nitrogén lövedék esetén egészen közeli ütközésekben (az ábra b) részén a *b*<1 a.u. tartomány) a többszörös ionizációk hozama akár egy nagyságrenddel is meghaladja az egyszeres ionizációét.



4.38 ábra: A közvetlen céltárgy ionizáció bP(b) függvényei ionizációs fokonként (q=1, ...5). Az ábra a) része az 1 MeV H⁺+H₂O, b) része a 650 keV N⁺+H₂O ütközésekre vonatkozik. A görbék CTMC szimuláció eredményei.

A céltárgy ionizáltsági fokának a meghatározásánál már figyelembe kell venni a lövedékre történő elektronbefogást is. A lövedék által befogott elektronok ugyan nem adnak járulékot a 4.3 alfejezetben bemutatott elektronemissziós spektrumokhoz, a vízmolekula ütközés következtében kialakult ionizáltsági fokához azonban hozzájárulnak. A céltárgy ionizáltsági fokát (vakanciák keltését a céltárgyban) így az ionizáció (i) és az elektron befogás (c) összege adja. Eszerint az adott ionizációs fok esetünkben kétféleképpen állhat elő: 1) szimultán többszörös ionizációval; 2) a lövedék egyszeres elektron befogásával + (egyszeres vagy többszörös) ionizációval. Itt hangsúlyozom, hogy a céltárgy ionizációs fokára, az elektronemisszióval járó ionizáció kifejezéstől való egyértelmű megkülönböztetéshez, ahol az szükséges a vakancia keltés kifejezést használom. A CTMC módszerrel az ionizációhoz hasonló bP(b) függvények adódnak az elektronbefogás + ionizáció esetén is, melyek a 4.39 ábrán láthatóak 1 MeV H^+ és 650 keV N^+ lövedék esetén. Ezen görbék viselkedése nagyon hasonlít a közvetlen ionizációra kapottakhoz.



4.39 ábra: CTMC módszerrel számolt bP(b) függvények a b impakt paraméter függvényében az egyszeres befogás+ionizáció folyamatára. Az ábra a) része az 1 MeV H^++H_2O ütközésekre kapott eredményeket, b) része pedig a 650 keV N^++H_2O ütközésekre kapottakat mutatja. A számok az egyes görbéken a céltárgy ionizáltsági fokát jelölik.

A mért fragmentációs spektrumokból származtatott többszörös céltárgy vakancia keltési hatáskeresztmetszeteket összevetettem az elméleti úton CDW-EIS és CTMC módszerrel kapott eredményekkel. A két különböző elméleti módszerrel számolt vakancia keltési hatáskeresztmetszetet mutatja a H⁺ és N⁺ lövedékkel bombázott H₂O molekulára a 4.40 ábra. A CTMC számolások szerint proton bombázás esetén (4.40a ábra) – összhangban az elektronspektrumoknál tárgyaltakkal – a céltárgy egyszeres ionizációja a domináns folyamat. Ennél, már a kétszeres ionizáció hatáskeresztmetszete is közel egy nagyságrenddel kisebb. A hozamcsökkenés a magasabb ionizációs fokok felé haladva is megmarad: minden egyes újabb ionizációs foknál körülbelül egy nagyságrendet esik a hatáskeresztmetszet. Az egyszeres elektronbefogás + ionizáció hatáskeresztmetszete (lásd a 4.40 ábrán a nyílt köröket és háromszögeket) mindenütt több nagyságrenddel kisebb, mint az ionizációé (tömör körök és háromszögek). Itt a hatáskeresztmetszet a vakanciák számának növekedésével lassabban csökken: míg a vakanciák számának 1-ről 5-re növekedésével az ionizációs hatáskeresztmetszet közel öt nagyságrendet esik, a befogás+ionizáció hatáskeresztmetszete alig több, mint két nagyságrendet csökken. Mindez a CTMC módszerre igaz. Az ábrából jól látható az is, hogy a CDW-EIS módszerrel kapott többszörös ionizáció és elektronbefogás +

ionizációs hatáskeresztmetszetek a céltárgy ionizációs fokának növekedésével gyorsabban csökkennek, mint a CTMC módszerrel kapottak.

Nitrogén ion lövedék esetén csupán a CTMC módszerrel kapott eredményeket prezentálom (4.40b ábra), mivel a CDW-EIS módszerrel számolt eredményekből a hasonló adatok kinyerése nehézségekbe ütközött. Nitrogén-ion bombázás esetén a többszörös ionizációs hatáskeresztmetszetek az ionizációs fok növekedésével lassabban csökkennek mint proton esetén: egyszeresről ötszörös ionizációs fokra növekedés közben a hatáskeresztmetszetek csökkenése kevesebb, mint két nagyságrend. Az ionizációs és elektron befogás+ionizációs hatáskeresztmetszetek közti különbség is mindenütt kisebb, mint egy nagyságrend, és a vakanciák számának a növekedésével a különbség egyre csökken. Az ötszörös vakanciakeltés esetén a befogás+ionizáció (c¹i⁴) hatáskeresztmetszete már kissé meg is haladja a közvetlen ötszörös ionizációét (c⁰i⁵).

A fragmentációs spektrumok illesztésével kapott, és a 4.4-es táblázatban bemutatott többszörös céltárgy ionizációs (vagy vakancia keltési) hatáskeresztmetszetek összevetése az elméletekkel kapott többszörös céltárgy ionizációs hatáskeresztmetszetekkel a 4.41 ábrán látható. Az ábra alapján általánosan elmondható, hogy a vízmolekula kísérleti adatokból származtatott többszörös ionizációs hatáskeresztmetszetei a vakanciák számának a növekedésével gyorsabban csökkennek, mint ahogy azt az elméletek megjósolják.

Protonbombázással, egyszeres céltárgy ionizáció esetén a két elmélet gyakorlatilag ugyanazt az eredményt adja. A céltárgy többszörös ionizációját azonban a CDW-EIS módszerrel kapott eredmények jobban közelítik, mint a CTMC módszerrel kapottak (lásd 4.41 ábra a) része). Ezzel együtt azonban a kvantummechanikai módszer a vízmolekula négy és ötszörös ionizációjára is jelentős hozamot jósol, melyek a kísérletekben nem voltak kimutathatóak. A CTMC eredmények az előzőhöz hasonló tendenciát mutatnak, viszont az eltérés a kísérleti adatoktól itt jelentősebb.

A héliumion-lövedékkel kapott többszörös vakanciakeltési hatáskeresztmetszeteket csak a CDW-EIS módszer eredményeivel tudtam összehasonlítani (lásd 4.41b ábra). Az elmélet a protonnál kapotthoz hasonlóan becsüli túl a kísérleti értékeket. A két és háromszoros vakancia keltés esetén viszonylag kis eltérés mutatkozik a kísérleti és elméleti adatok közt, míg a molekula négyszeres ionizációja esetén már közel egy nagyságrend a különbség. Bár az elmélet szerint az ötszörös céltárgy ionizáció hatáskeresztmetszete alig két nagyságrenddel kisebb, mint a kétszeresé, a kísérleti eredményekben ötszörös ionizációhoz tartozó fragmentációs csatornát nem mutattunk ki.



4.40 ábra: Az ábra a) része az 1 MeV H⁺+H₂O ütközésre CTMC módszerrel kapott ionizációs (•) és egyszeres befogás+ionizációs (\circ), valamint a CDW-EIS módszerrel kapott ionizációs (•) és egyszeres befogás+ionizációs (Δ) hatáskeresztmetszeteket mutatja a céltárgy ionizációs fokának (vakanciák számának) függvényében. A b) rész a 650 keV N⁺+H₂O ütközésre mutatja a CTMC-vel kapott hatáskeresztmetszeteket. A jelölések az ábra a) és b) részén megegyeznek.

Nitrogén ion lövedékre a CTMC módszerrel kapott többszörös ionizációs hatáskeresztmetszetek már egészen a céltárgy négyszeres ionizációjáig jól egyeznek a mérési eredményekkel (lásd 4.41c ábra). A kísérleti ötszörös vakanciakeltési hatáskeresztmetszetet azonban az elméleti eredmény közel egy nagyságrenddel túlbecsüli.



Általánosan elmondható, hogy mind a CTMC, mind a CDW-EIS elmélet a vízmolekula ionizációs fokának a növekedésével egyre markánsabban túlbecsüli a mérésekkel kapott többszörös vakanciakeltések hatáskeresztmetszeteit. Ennek oka, hogy mindkét elméletben a függetlenrészecske-közelítést alkalmazták a többszörös céltárgy-ionizáció meghatározására. Így mindét módszerben elhanyagolták az elektronelektron kölcsönhatást. A többszörös vakanciakeltést statisztikus úton becsülték meg, egymástól független eseményeknek tekintve az egyes vakanciák keltését. Gyakorlatilag a többszörös ionizációs valószínűségek eloszlását binomiális eloszlással közelítették. Látható, hogy ez a módszer proton lövedék esetén maximum kétszeres, hélium esetén háromszoros, nitrogén esetén négyszeres vakancia keltéséig ad elfogadható eredményt bár az egyezés ezekben az esetekben is fokozatosan romlik az ionizációs fok növekedésével: az elméleti eredményekhez viszonyítva a magasabb céltárgy ionizációs fokok hozama csökken. Magasabb ionizációs fokok esetén azonban ez az eltérés szinte exponenciálisan nő. A csökkenés a nitrogén lövedékkel indukált ötszörös ionizáció esetén kifejezetten szembetűnő. Ilyenkor az elektronkorreláció szerepe olyan jelentőssé válik, hogy az ionizációs események közelítőleg sem tekinthetők függetlennek egymástól.

A fentiekből látszik, hogy az alkalmazott elméleti módszerek kiterjesztése a molekuláris ionizáció leírására sikeres volt, a kísérletekkel – különösen kisebb ionizációs fokoknál – kvantitatív egyezést kapunk. Bár magasabb ionizációs fokoknál a független részecske modell alkalmazása miatt mindkét elmélet fokozatosan túlbecsüli a mért hozamokat, összességében úgy tekinthetjük, hogy a fejlesztések nagyon jó eredményeket hoztak.

Összefoglalásként elmondhatom, hogy víz és metán molekulákat 1 MeV H⁺, 1 MeV He⁺ és 650 keV N⁺ ion-lövedékekkel bombázva a 20° és 160° közötti megfigyelési szögtartományban megmértem a Coulomb-robbanásból származó töltött molekula-töredékek (fragmentum-ionok) *E/q* spektrumait. Ezekből kétszeresen differenciális fragmentációs hatáskeresztmetszeteket határoztam meg. Az irodalmi adatok feldolgozásával összeállítottam a víz és metán molekulák mások által számolt és szelektív módszerekkel mért fragmentációs csatornáinak listáját, azok fontosabb paramétereit. A vízmolekulán mért spektrumokban azonosítottam ezeket az ismert fragmentációs csatornákat és illesztéssel meghatároztam abszolút hozamaikat. A teljes abszolút hozam a proton lövedéktől a nitrogénig körülbelül két nagyságrendnyit növekszik. Ezzel együtt a növekvő perturbáció a nagyobb energiájú H⁺ csúcsok, azaz magasabb ionizációs fokhoz tartozó csatornák megjelenését, illetve hozamuk növekedését eredményezi. Mindhárom lövedék esetén a vízmolekula kétszeres ionizációjához tartozó OH⁺+H⁺ csatorna hozama a legnagyobb. Vízmolekulákra a különböző lövedékek esetén a legnagyobb kinetikus energia-felszabadulással járó csatornák a következők: protonnál a víz háromszoros ionizációjához tartozó O²⁺+H⁺ +H⁰, hélium ionnál a négyszeres ionizációhoz tartozó O³⁺+H⁺+H⁰, nitrogén lövedéknél pedig az ötszörös ionizációhoz tartozó O⁴⁺+H⁺+H⁰ csatorna.

A vízmolekula ionizációs foka és a fragmentációs csatornák közti egyértelmű kapcsolatot felhasználva az egyedi fragmentációs csatornák illesztéssel meghatározott hozamaiból többszörös ionizációs hatáskeresztmetszeteket származtattam. Ezeket összehasonlítottam a CDW-EIS és a CTMC számolások eredményeivel. Proton- és

héliumion-bombázás esetén a mért hatáskeresztmetszeteket jól közelítik a kvantummechanikai (CDW-EIS) számolások. A klasszikus (CTMC) modell protonbombázás esetén túlbecsüli a többszörös ionizációs hatáskeresztmetszeteket, de kiváló egyezést ad nitrogénion-bombázás esetén egészen a négyszeres ionizációig. Magasabb ionizációs fokok felé haladva az egyezés mindkét elmélet esetén fokozatosan romlik. Ezt annak tulajdonítom, hogy mindkét elméleti közelítés a független részecske modell keretei között marad, amelyben az elektron-korrelációt nem vesszük figyelembe. Az abszolút hatáskeresztmetszetek szintjén az elméletekből és a fragmentációs spektrumokból származtatott többszörös céltárgy ionizációs hatáskeresztmetszetek egyezése jónak tekinthető.

A 4.4 alfejezetben saját munkámnak tekintem a mérések előkészítésében és kivitelezésében való aktív részvételt (50%), és a mérési eredmények kiértékelését, melyet 100%-ban én végeztem. Meghatározó szerepem volt az eredmények értelmezésében (60%) és publikálásában (70%) is. A CTMC és CDW-EIS eredményekért köszönettel tartozom Dr. Sarkadi László és Dr. Gulyás László kollégáimnak. A tézisponthoz az [1], [5], [7], [10], [E2], [O1-O4] és [O7] közleményeim tartoznak.

4.5 Negatív hidrogén-ion fragmentumok keletkezése molekuláris ütközésekben

Régóta ismeretes, hogy lassú, kis energiaátadással járó ütközésekben negatív ion fragmentumok is keletkezhetnek [74]. Néhány éve Juhász és munkatársai [75] kimutatták, hogy negatív hidrogén ionok nagy energiaátadással járó ütközésekben is keletkezhetnek. Az ilyen ütközései rendszerek többnyire nettó pozitív töltéssel rendelkeznek. Munkájukban 7 keV OH⁺+Ar, és OH⁺+aceton ütközésekben mért elektronemissziós spektrumokban negatív hidrogén ion (H⁻) csúcsokat mutattak ki. Igazolták továbbá hogy az adott energiájú ütközésekben H⁻ fragmentumok mind a céltárgyról mind a lövedékről származhatnak. Jelen alfejezetben ezen munkának a folytatásaként bemutatom nemzetközi együttműködésben, a franciaországi GANIL intézetben végzett kutatásainkat, melyben szintén negatív hidrogén ionok keletkezését vizsgáltuk 6,6 keV O⁺+H₂O, és 7 keV OH⁺+Ar ütközésekben.

A 7 keV OH⁺+Ar ütközésekben a lövedékről származó H⁺ és H⁻ fragmentumok energia, és szögeloszlását vizsgáltuk, elsősorban kis megfigyelési szögeknél. A kapott kétszeresen differenciális abszolút hatáskeresztmetszetek – melyeket a leírt abszolút hatáskeresztmetszet meghatározási módszerhez hasonló eljárással származtattunk – a 4.42 ábrán láthatók különböző megfigyelési szögek alatt. Az ábráról szembetűnik, hogy mind a H⁺, mind a H⁻ fragmentum emisszió hatáskeresztmesze $\theta = \sim 8-10^{\circ}$ -tól mind kisebb, mind nagyobb megfigyelési szögek felé haladva csökken. A kapott fragmentációs hatáskeresztmetszetek további elemzését itt is illesztéssel végeztük (lásd szintén a 4.42 ábrát). A háttér megillesztése – mely főként a negatív hidrogén ion csúcsokhoz adott nagy, elektronokból származó hátteret – hatványfüggvénnyel történt. A H⁺ és H⁻ csúcsok illesztésénél akkor kaptuk a legjobb illeszkedést, ha kettős Gaussfüggvénnyel illesztettük azokat: egy keskeny ~60 eV FWHM értékkel rendelkező, és egy széles ~140 eV FWHM értékkel rendelkező görbével, melyek csúcspozíciói alig tértek el egymástól. Az, hogy a csúcsok illesztéséhez két ennvire eltérő Gauss-görbére volt szükség arra utal, hogy mind a H⁺, mind a H⁻ emisszióhoz különböző folyamatok járulhatnak hozzá. A MOLPRO számítógépes kóddal végzett ab-initio számolások eredménye szerint a kettős Gauss struktúra magyarázható például a nehéz oxigén atom kéttest ütközést módosító hatásával. Valószínűsíti ezt, hogy a két komponens relatív aránya a megfigyelési szög függvényében változik: a széles görbe járuléka 30°-tól 5° felé haladva növekszik.



4.42 ábra: Az 7 keV OH⁺+Ar ütközésekben kapott kétszeresen differenciális H⁺ (ábra a) része), és H⁻ (ábra b) része) emissziós spektrumok. A mérési adatokat pontok jelölik. Az ábra egyben a kettős Gauss-görbékkel történt illesztés (zöld szaggatott, és kék folytonos vonal) eredményét is mutatja. A folytonos világoskék vonal az elektronháttérre illesztett hatványfüggvényt jelöli.

A kettős csúcs pozícióját (a két görbe csúcspozícióinak átlaga) elemezve, és összehasonlítva rugalmas szóródás számolások eredményével kiderült, hogy 30° megfigyelési szög alatt a mért energiaértékek jelentősen, akár 10-20 eV-vel is felülmúlják a számolt eredményeket. Mivel az elektronátadáshoz az ütközési partnerek között energia szükséges (endoterm folyamat), a megjelenő plusz kinetikus energiából arra következtettünk, hogy az ütközés következtében az OH⁺ molekulaion disszociatív energiaállapotba gerjesztődik, melyhez a szükséges néhány eV gerjesztési energia az ütközésből származik.



4.43 ábra: A számolt rugalmas szóródási hatáskeresztmetszet görbe illeszkedése a mérésekből kapott hatáskeresztmetszetekre. A számolt görbe H⁻ adatokra (**a**) egy ~0,0066-os faktorral, H⁺ adatokra pedig egy ~0,53-mas faktorral (**b**) van megszorozva.

A Gauss-csúcsok illesztésével kapott két átfedő csúcs területének az összegéből szög szerint differenciális hatáskeresztmetszeteket határoztunk meg mind a H⁺, mind a H⁻ csúcsokra. A kapott hatáskeresztmetszetek szögfüggése jól leírható a 412 eV H⁰+Ar ütközésre számolt rugalmas szóródási hatáskeresztmetszete megfigyelési szögtől való függésével. Hibahatáron belüli egyezést kaptunk, ha a hidrogén atomra számolt rugalmas szóródási hatáskeresztmetszetet megszoroztuk H⁺ adatok esetén 0,53-mal, H⁻ adatok esetén pedig 0,0066-tal (lásd 4,43 ábra). Látható, hogy a szorzófaktorokkal igen jó egyezés érhető el. Ezek fizikai tartalommal is rendelkeznek, nevezetesen az adott
töltésállapotú hidrogén fragmentum keletkezési valószínűségét adják. Eszerint, a szóródott hidrogén atomok ~0,7 %-a negatív töltésűvé, ~53%-a pedig pozitív töltésűvé válik. Indirekt módon következtethetünk a semleges hidrogén fragmentumok keletkezésének valószínűségére is, melyre ~0.46-ot (~46%) kaptunk. Ez alapján elmondhatjuk, hogy a $\sigma_{\rm H}/\sigma_{\rm H^+}$ arány átlagosan ~0,013 volt, melytől egyetlen mért szögnél sem tapasztaltunk jelentős eltérést. Továbbá megbecsültük a $\sigma_{\rm H0}/\sigma_{\rm H^+}$ arányt is, melyre, összhangban Martínez és Yousif [117] hasonló ütközési rendszeren, kevésbé differenciális mérésben kapott eredményeivel, körülbelül egységnyi értéket kaptunk.

A 6,6 keV O⁺+H₂O ütközésekben a spektrumok mérésénél és elemzésénél a H⁻ emisszión túl, vizsgáltuk további negatívion-fragmentumok keletkezését is. Ezt a GANIL intézetben használt elektrosztatikus analizátorral rendelkező spektrométer mágneses szeparációval való kiegészítése tette lehetővé, mellyel az elektronok okozta hátteret majdnem teljesen ki tudtuk küszöbölni (a spektrométer sematikus rajzát lásd a 3.2.2 alfejezetben). A H⁻ csúcs mellett további, O⁻ és OH⁻ negatívion-fragmentum csúcsokat is kimutattunk a kétszeresen differenciális spektrumokban, melyek a 4.44 ábrán láthatók.

Ezekben a spektrumokban a különböző összetevők jól elkülöníthetők. A fő járulékot egy széles, az energiával lassan csökkenő intenzitással jellemezhető struktúra az ún. folytonos spektrumkomponens adja, melynek kis energián van maximuma. θ <90° megfigyelési szögekben a nagyenergiás szakaszon további kisebb csúcsok is láthatók. Mind a fő komponenst, mind a csúcsokat negatív töltésű fragmentumok alkotják. Az elektrosztatikus és mágneses szeparáció kombinálásával mért spektrumainkat kiegészítve, repülési idő méréssel egyértelműen azonosítani tudtuk a kapott összetevőket. Ez alapján a folytonos spektrumkomponenst távoli, lágy ütközésekből származó negatív töltésű fragmentumok alkotják, melyek tartalmaznak mind H⁻, mind O⁻ és OH⁻ járulékokat. Ezek relatív hozama a szög függyényében jelentősen változik: 75° és 90° között a H⁻ és nehéz negatív fragmentum (O⁻, OH⁻) hozam közel egyenlő. Akár kisebb, akár nagyobb szögek felé haladunk, a nehéz fragmentumok járuléka csökken, a H⁻ járulék pedig közel változatlan marad. A nehéz fragmentumok aránya 40° (és 140°) körül már egy nagyságrendet csökken. A spektrum nagyenergiás részében megjelenő csúcsok csak előreszögekben láthatóak, és az energiájuk függ a megfigyelési szögtől. Viselkedésük hasonló az elektronspektrumokban megfigyelt (lásd 4.3.4 alfejezet 4.29 ábrája) kéttest-ütközésből származó elektronok csúcsához. Egyszerű kinematikai számolással megmutatható, hogy az alacsonyabb energián megjelenő csúcsot a kéttest-ütközésekből származó H⁻, a magasabb energián láthatót O⁻ és OH⁻ fragmentumok alkotják. Az alkalmazott kísérleti technikával az O⁻ és OH⁻ csúcsokat nem tudtuk különválasztani egymástól.



4.44 ábra: 6,6 keV O^+ + H_2O ütközésekben kapott kétszeresen differenciális negatív ion emissziós hatáskeresztmetszetek.

A mért kétszeresen differenciális hatáskeresztmetszet adatokból energia és szög szerinti integrálással határoztuk meg az anion emisszió teljes hatáskeresztmetszetét, $\sigma_{anion} = 5 \pm 3 \times 10^{-18}$ cm^2 adódott. teljes anion-emissziós melyre А kapott hatáskeresztmetszetet összehasonlítottuk a P. Rawat és munkatársai [118] által elektronbombázással kapott DEA hatáskeresztmetszetekkel. Azt tapasztaltuk, hogy az általunk egy nettó pozitív töltéssel rendelkező ütközési rendszerben mért hatáskeresztmetszetek csaknem olyan magasak mint a DEA hatáskeresztmetszetek elektronbombázás esetén. A repülési idő mérésekből úgy becsültük, hogy ezen teljes hatáskeresztmetszet kétharmadát a H⁻ fragmentumok, egyharmadát a nehéz anion fragmentumok adják.

A meglepően magas negatívion-emissziót klasszikus pályájú szimulációval próbáltuk reprodukálni. Ehhez a molekulában a párkölcsönhatásokhoz tartozó kölcsönhatási potenciálokat a magtávolság függvényében a *MOLPRO* programkóddal határoztuk meg, melyek mindegyike alapállapotú kétatomos "molekulára" vonatkozik. A Newtoni mozgásegyenletek (csatolt differenciálegyenletek) megoldásából az atomi centrumok mozgásának dinamikáját leírva és az OH⁺+Ar ütközésekhez hasonlóan kiszámoltuk a rugalmas ütközés hatáskeresztmetszetét. Ebből, az egyes

töltésállapotokra a kísérletekből meghatározott szorzófaktort használva, meghatároztuk a kétszeresen differenciális abszolút hatáskeresztmetszetet a H⁻ fragmentum emisszióra. A szimuláció eredményei azonban erősen alábecsülték a lágy ütközésekből származó negatívion-produkciót, valamint a kéttest-ütközésekből származó csúcs szélességét is rosszul reprodukálták. Ennek oka, hogy a szimulációkban a b>1 a.u. ütközésekben az O-H kötéseknek csak kevesebb, mint 10%-a bomlik fel, azaz a távoli (lágy) ütközésekben a molekulának átadott energia kevesebb, mint a disszociációs küszöbenergia. Hasonlóan az OH⁺+Ar ütközésekhez feltételezhetjük, hogy az elektrongerjesztések itt is jelentős szerepet játszanak a disszociációban, azaz a molekula az ütközésben instabil gerjesztett állapotba kerül. A szimulációban a gerjesztések hatását hozzáadott kinetikus energiaként figyelembe modellezve, a mért spektrumoknak mind a folytonos részét, mind a kéttest-ütközésből származó negatívion-csúcsokat reprodukálni tudtuk.

A 4.5 alfejezet azokban a nemzetközi együttműködésben született eredményeket foglalja össze, amelyekben negatív töltésű molekula-fragmentumok keletkezését vizsgáltuk keV energiájú ion-molekula ütközésekben. Az OH⁺ molekulaion fragmentációjának vizsgálata során azt találtuk, hogy mind a H⁺ mind a H⁻ fragmentumok csúcsai két átfedő csúcsra bonthatók. Vizsgáltuk az átfedő csúcsok kialakításában szerepet játszó lehetséges folyamatokat. A spektrumok elemzéséből kiderült, hogy az összes hidrogén fragmentum ~0,7 %-a anionként jelenik meg. Értelmeztük az O⁺+H₂O ütközésekben kapott kétszeresen differenciális anionemissziós spektrumokban látható szerkezeteket. Klasszikus szimulációval kimutattuk, hogy az elektrongerjesztések szerepe, illetve a további atomi centrumok hatása az anionok keletkezésében jelentős lehet. Azonosítottuk a tiszta kéttest- és a soktestkölcsönhatásból származó anion-fragmentumok alkotta struktúrákat.

Nemzetközi együttműködésünk egy nagyobb létszámú csoportban végzett munkát jelentett. Itt aktívan részt vettem a mérésekben (30%), az eredmények kiértékelésében (40%), és folyamatos érdeklődéssel vettem részt az eredmények értelmezéséről folyó vitákban, megbeszélésekben (20%). A tézisponthoz a [3], [4], [8], [05] és [06] közleményeim tartoznak.

5. Összefoglalás

Az atomfizika az atomok és molekulák szerkezetével, és kölcsönhatásaival foglalkozik. Ahhoz, hogy ezeket tanulmányozhassuk, a kísérletekben a vizsgálandó rendszert ki kell billentenünk egyensúlyi helyzetéből, pl. úgy, hogy ionokkal bombázzuk őket. Az ion-atom és ion-molekula ütközésekben lejátszódó folyamtokról és az ütközési partnerek tulajdonságairól a kilépő töltött részecskék energia és szögeloszlásának mérésével gyűjthetünk információt. A kísérleti eredmények elméleti jóslatokkal való összevetése pedig a meglévő modellek ellenőrzését teszi lehetővé, illetve a modellek pontosítására, fejlesztésére ösztönzi a kutatókat.

Dolgozatomban a molekulák ionizációja során emittált elektronok, valamint az ezt követő fragmentáció során kilépő iontöredékek energia és szögeloszlásának vizsgálatában elért eredményeimet mutatom be. Ismertetem a mérőrendszer és a kiértékelő módszer fejlesztésében végzett munkámat. A mért spektrumokból abszolút fragmentációs és elektronemissziós hatáskeresztmetszeteket határoztam meg, és vizsgáltam az ütközési rendszertől, azaz a lövedék-paraméterektől és a céltárgytól való függésüket. A mért hatáskeresztmetszeteket CDW-EIS és CTMC elméleti modellek eredményeivel összehasonlítva azonosítottam az ütközésben lezajló folyamatokat. Mindhárom lövedék esetén meghatároztam a kapott fragmentációs spektrumokból a céltárgy többszörös ionizációjának hatáskeresztmetszeteit. Bemutatom a nemzetközi együttműködésben, alacsonyabb bombázó ionenergia tartományban végzett méréseket is, melyekben negatív töltésű ion-fragmentumok keletkezését is vizsgáltuk.

A kísérleteket az Atomkiban és a GANIL intézetben, Franciaországban végzetük. Az Atomkiban található mérési elrendezésben a gáz céltárgyak molekuláit a VdG-5 részecskegyorsítóból érkező MeV energiájú H⁺, He⁺ és N⁺ ionokkal bombáztuk. Az ütközési zónából kilépő elektronok és kation-fragmentumok energia és szögeloszlását egy, az Atomkiban kifejlesztett kompakt, energia-diszperzív elektrosztatikus spektrométerrel mértük. Spektrumainkat a nyalábirányhoz képest 20° és 160° közé eső megfigyelési szögtartományban vettük fel. A GANIL intézetben található hasonló kísérleti elrendezésben az elektrosztatikus spektrométert kiegészítettük mágneses eltérítéssel is. Ennek segítségével szétválasztottuk az elektronokat és negatív ionfragmentumokat, így az utóbbiak eloszlását alacsony háttér mellett vizsgálhattuk.

A dolgozatban bemutatom az általam kifejlesztett gáz céltárgy rendszert kifejezetten molekula fragmentációs kísérletekhez. Az abszolút hatáskeresztmetszetek meghatározása szempontjából kulcsfontosságú mennyiséget, a céltárgy részecskesűrűségét a megtervezett gázbeeresztő rendszer paramétereit felhasználva az áramlási ellenállásokon keresztül a gázmennyiség áramokból származtattam. Ezzel megkaptam a céltárgy részecskesűrűségét a puffernyomás függvényében. A szokásos eljáráson túl, ellenőrzésül egy hatáskeresztmetszet méréseken alapuló kalibrációs módszert is alkalmaztam. A kamrát a mérendő gázzal elárasztva, a kamranyomás és a céltérfogatban uralkodó gáznyomás között határoztam meg közvetlen összefüggést. Így kalibrálni tudtam a puffernyomás és céltárgy részecskesűrűsége közti nemlineáris függvénykapcsolatot. Ez széles részecskesűrűség-tartományban teszi lehetővé abszolút hatáskeresztmetszetek megbízható meghatározását.

A szög szerint differenciális abszolút hatáskeresztmetszet meghatározása gáznyaláb céltárgy esetén nem nyilvánvaló, mert a gáznyaláb céltárgy anyagától és puffernyomástól is függő alakja közvetlen mérésekkel nem követhető. Ezért a szög szerint differenciális abszolút hatáskeresztmetszetek meghatározására a releváns paraméterek azonosításán, és azok pontos mérésekkel történő meghatározásán túl, a már említett elárasztásos módszert is felhasználtam. A megfigyelési szög függvényében mért hozamok differenciális hatáskeresztmetszetekké konvertálására kidolgoztam és jó eredménnyel alkalmaztam egy korrekciós formulát, mely a homogén, és a hengeres céltárgyakra vonatkozó összefüggések lineáris kombinációján alapul. Ennek egyetlen szabad paraméterét az elárasztásos kontrollmérések segítségével határoztam meg. Az 1 MeV H^++CH_4 ütközésekben kapott kétszeresen differenciális ionizációs hatáskeresztmetszetek jól egyeznek az irodalomban referencia adatoknak tekintett hatáskeresztmetszetekkel.

Víz, metán és nitrogén molekulákat 1 MeV H⁺, 1 MeV He⁺ és 650 keV N⁺ ionlövedékekkel bombázva а mért spektrumokból kétszeresen differenciális elektronemissziós hatáskeresztmetszeteket határoztam meg a 20° és 160° közötti megfigyelési szögtartományban. Azonosítottam és elemeztem a különböző ionizációs mechanizmusokból származó járulékokat a különböző ütközési rendszerek esetén. Azt hogy proton lövedéktől a nitrogén találtam. felé haladva nemcsak а hatáskeresztmetszetek növekednek, hanem a spektrumok szerkezete is változik. Ezt a perturbáció-erősség növekedésének tulajdonítottam, mely a lövedék effektív töltésének és sebességének hányadosával arányos. Árnyékolt lövedékekre az effektív töltés az iontöltésnél nagyobb lehet, a lövedéksebesség pedig a protontól a nitrogén felé haladva csökken. Erősebb perturbáció esetén a többszörös ionizáció szerepe is megnő. Az árnyékolt lövedékek az ütközésekben maguk is ionizálódnak, a spektrumokban ennek járulékát is azonosítottam.

A különböző céltárgyakra kapott hatáskeresztmetszetek összehasonlításával a Wilson és Toburen [52] által csupán szénhidrogénekre megállapított skálázási szabályt

kiterjesztem a H₂O és N₂ molekulákra is. Azt találtam, hogy a skálázási szabály a lövedék elektron vesztésére (lövedék ionizáció) is érvényes.

A különböző lövedékekkel víz és metán céltárgy esetén meghatározott kétszeresen differenciális elektronemissziós hatáskeresztmetszeteket összehasonlítottam CDW-EIS és CTMC elméleti modellek keretében a lövedék és a céltárgy ionizációjára végzett számolások eredményeivel. Mindkét elméleti módszernél olyan fejlesztések történtek, amelyek az ionizációt a molekulapályák szintjén írják le. A CTMC módszer mindhárom lövedék esetén reprodukálja a kísérleti hatáskeresztmetszet értékeket, vagyis a lövedékről és a céltárgyról származó elektronok járulékainak összegét. A perturbatív CDW-EIS elmélet a H⁺ lövedék esetén adja a legjobb egyezést. A CDW-EIS számolások a He⁺ lövedékre vonatkozó kísérleti adatokat még viszonylag jól reprodukálják, de N⁺ lövedék esetén az eltérés már jelentős. A hatáskeresztmetszetek elektronenergia-függésének összehasonlításával kimutattam a Fermi-féle gyorsítási mechanizmus megjelenését az N⁺ lövedékkel mért spektrumokban. Nagyobb (200 eV fölötti) elektronenergiákon ennek járuléka meghatározóvá válik.

Fontos eredményeket hozott a víz és metán molekuláknak MeV energiájú ionbombázással indukált fragmentációjának kísérleti vizsgálata. Itt az ionfragmentumok kétszeresen differenciális E/q spektrumait mértünk a Coulombrobbanásra jellemző (0-100 eV) energiatartományban. Az irodalmi adatok feldolgozásával összeállítottam a molekulák mások által számolt és szelektív módszerekkel mért fragmentációs csatornáinak listáját, azok fontosabb paramétereit. A mért spektrumokban azonosítottam ezeket az ismert fragmentációs csatornákat, és a vízmolekula esetén illesztéssel meghatároztam abszolút hozamaikat. A teljes abszolút hozam a proton lövedéktől a nitrogénig körülbelül két nagyságrendnyit növekszik. Ezzel együtt a növekvő perturbáció a nagyobb energiájú H⁺ csúcsok, azaz magasabb ionizációs fokhoz tartozó csatornák megjelenését, illetve hozamuk növekedését eredményezi. Mindhárom lövedék esetén a vízmolekula kétszeres ionizációjához tartozó OH⁺+H⁺ csatorna hozama a legnagyobb. Vízmolekulákra a különböző lövedékek esetén a legnagyobb kinetikus energia-felszabadulással járó csatornák a következők: protonnál a víz háromszoros ionizációjához tartozó O²⁺+H⁺+H⁰, hélium ionnál a négyszeres ionizációhoz tartozó O³⁺+H⁺+H⁰, nitrogén lövedéknél pedig az ötszörös ionizációhoz tartozó O⁴⁺+H⁺+H⁰ csatorna.

A vízmolekula ionizációs foka és a fragmentációs csatornák közti egyértelmű kapcsolatot felhasználva az egyedi fragmentációs csatornák illesztéssel meghatározott hozamaiból többszörös ionizációs hatáskeresztmetszeteket származtattam. Ezeket összehasonlítottam a CDW-EIS és a CTMC számolások eredményeivel. Proton- és héliumion-bombázás esetén a mért hatáskeresztmetszeteket jól közelítik a

kvantummechanikai (CDW-EIS) számolások. A klasszikus (CTMC) modell protonbombázás esetén túlbecsüli a többszörös ionizációs hatáskeresztmetszeteket, de kiváló egyezést ad nitrogénion-bombázás esetén egészen a négyszeres ionizációig. Magasabb ionizációs fokok felé haladva az egyezés mindkét elmélet esetén fokozatosan romlik. Ezt annak tulajdonítom, hogy mindkét elméleti közelítés a független részecske modell keretei között marad, amelyben az elektron-korrelációt nem vesszük figyelembe. Az abszolút hatáskeresztmetszetek szintjén az elméletekből és a fragmentációs spektrumokból származtatott többszörös ionizációs hatáskeresztmetszetek egyezése jónak tekinthető.

Nemzetközi együttműködésben vizsgáltuk negatív töltésű molekula-fragmentumok keletkezését keV energiájú ion-molekula ütközésekben. Kimutattuk, hogy a spektrumokban a H⁻ fragmentumok két átfedő csúcsban jelennek meg, melyek két különböző folyamatból származnak. A spektrumok elemzése azt mutatja, hogy az összes hidrogén töredék ~0,7 %-a anion fragmentumként jelenik meg. Értelmeztük az O⁺+H₂O ütközésekben kapott kétszeresen differenciális anion-emissziós spektrumokban látható szerkezeteket. Klasszikus szimulációval kimutattuk, hogy az elektrongerjesztések szerepe, illetve a további atomi centrumok hatása az anionok keletkezésében jelentős lehet. Azonosítottuk a tiszta kéttest, és a soktest kölcsönhatásból származó anion-fragmentumok alkotta struktúrákat.

A dolgozatban bemutatott eredmények az alapkutatások körébe tartoznak, ám szinte mindegyikük fontos lehet más tudományterületek és alkalmazások számára. A molekulák fragmentációja a világűrben, a bolygók légkörében lejátszódó folyamatok és a sugárbiológiai alkalmazások szempontjából egyaránt alapvető jelentőségű.

6. Summary

Atomic physics deals with the structure of atoms and molecules and with their interactions. In order to investigate them, one has to disturb the target for example by bombarding it with swift ions. In ion-atom and ion-molecule collisions the properties of the colliding partners can be investigated by measuring the energy and angular distribution of the emitted charged particles. The interpretation of the experimental results including the identification of the different processes are based on the comparison with theoretical predictions at different levels. The analysis often leads to significant developments of the theoretical models.

In this work I present the results obtained in studying the electron emission and the subsequent molecular fragmentation processes by ion impact. I describe my work in developing the experimental system and the evaluation method. From the measured electron and ion spectra I determined the absolute fragmentation and electron emission cross sections, and I analysed their dependence on the collision systems e. g. the properties of the projectile and target. I identified the different electron emission processes by comparing the experimental cross sections with the results of CDW-EIS and CTMC calculations. In addition, from the fragmentation spectra the absolute multiple target ionization cross sections for the three projectiles could be determined. I also present our measurements on negative hydrogen-ion production in low-energy ion-molecule collisions carried out in the frame of an international collaboration.

The measurements were carried out in Atomki and in the GANIL institute, Caen, France. In the Atomki apparatus the jet of the target gases were crossed by MeV energy H^+ , He^+ and N^+ ion beams supplied by the VdG-5 accelerator. The energy and angular distribution of the electrons and cation fragments originating from the collision region were analysed by a compact- energy-dispersive electrostatic spectrometer, designed in Atomki. Spectra were taken in the 20-160° observation angle range relative to the incident ion beam. In the GANIL arrangement magnetic and electrostatic field were applied simultaneously. The setup and the electrostatic spectrometer, were similar to those used in Atomki. It allowed us to measure the distributions of negative-ion fragments, separating the electrons from the anions.

In the dissertation I present the gas target system designed and constructed specifically for molecule fragmentation experiments. The accurate value of the target gas density is essential for the determination of the absolute cross sections. I calculated the target density from the gas flow parameters and the flow resistances, starting from the geometrical properties of the gas inlet system. With this method I obtained the

target gas density as a function of the pressure in the buffer container. Beyond that procedure I also applied another method for the determination of the target gas density. It is based on the measurement of the cross sections at a homogeneous filling of the chamber, in which case the target density can be directly calculated from the measured pressure. By combining the two methods, the non-linear connection between the target density and the buffer pressure as well as the absolute cross sections could be determined in a wide range of the target gas densities.

The determination of absolute, angle-differential cross sections is not straightforward for effusive gas jet targets, since the shape of the jet can not be measured directly. Thus for the determination of absolute cross sections differential in angle and energy, beyond the determination of the relevant parameters, I utilized the method of homogeneous filling (see statement 1). For converting the measured angular dependent yields to differential cross sections, I developed and successfully applied a correction formula. It is based on the linear combination of an expanded homogeneous and a thin cylindrical target. The obtained expression has only one free parameter, which was determined by reference measurements performed with homogeneous gas density in the experimental chamber. The double-differential ionization cross sections obtained in 1 MeV H^++CH_4 collisions are in good agreement with the reference data measured by Wilson and Toburen [52].

In the experiments molecular water, methane and nitrogen targets were bombarded with 1 MeV H⁺, 1 MeV He⁺ and 650 keV N⁺ ion projectiles. Spectra were taken in the observation angle range of 20-160°, and were converted to double-differential electronemission cross sections. In the spectra measured in different collision systems I identified and analysed the contributions originating from the different electron emission mechanisms. I found that the cross sections are increasing from H⁺ to N⁺ projectiles. The structure of the spectra are also different for the three projectiles. These findings are attributed to the increasing perturbation which can be characterized by the ratio of the effective charge and velocity of the projectile. For screened projectiles the effective charge can exceed the ionic charge. In addition, the velocity of the projectiles are decreasing from H⁺ to N⁺. At higher perturbation strength the role of multiple ionization also increases. For screened projectiles, electrons originating from the bombarding ions also contribute to electron emission. These contributions are identified in the spectra.

By comparing the electron emission cross sections obtained for the different target species the scaling rule of Wilson and Toburen (established earlier only for carbohydrates) were extended to the target molecules of H_2O and N_2 . The scaling rule is fond to be valid also for the ionization of the projectile (electron loss).

The double-differential electron-emission cross sections for water and methane obtained by different projectiles were compared with the results of CDW-EIS and CTMC calculations for both electron loss and target ionization. Both theoretical models were recently improved to describe molecular ionization at the level of molecular orbitals. The sum of the calculated projectile and target ionization calculated by the CTMC method reproduce the measured electron emission spectra for all of our projectiles. The perturbative CDW-EIS method provides a good agreement with the experiments for the H⁺ projectile. The agreement is worse for He⁺ and pure for N⁺ impact. With the analysis of the energy dependence of the electron emission cross sections induced by N⁺ projectiles I demonstrated the appearance of the Fermi-shuttle acceleration mechanism in the electron spectra. Above 200 eV electron energy it becomes the dominant electron emission mechanism.

Important results were produced by the investigation of the fragmentation pattern of the H₂O and CH₄ molecules. Here the E/q spectra of the fragments originating from the dissociation of the target molecules induced by 1 MeV H⁺, 1 MeV He⁺ and 650 keV N⁺ impact were measured. I performed the measurements in the 0-100 eV fragment energy range, which is typical for the Coulomb-explosion. By analyzing the available data in the literature I listed the possible fragmentation channels including their most important properties. These channels were identified in our spectra, and their absolute yields have been determined by a fitting procedure. The total fragmentation cross section is found to be increasing about two orders of magnitude from the H⁺ to the N⁺ projectile. With the increasing perturbation from H^+ to N^+ , higher energy proton fragments appear sequentially, which belong to higher ionization degrees of the target. I found that the OH^++H^+ channel has far the highest yield for any of the projectiles. The highest observed kinetic energy release (KER) values belong to the $O^{2+}+H^{+}+H^{0}$, $O^{3+}+H^{+}+H^{0}$ and $O^{4+}+H^{+}+H^{0}$ channels for H^{+} , He^{+} and N+ impact, respectively. These channels refer to the q=3, 4 and 5 ionization degrees of the target molecule, respectively.

Utilizing the unique connection between the ionization degree of the target and the identified fragmentation channels, I deduced the multiple ionization cross sections of the water molecule from the channel yields. The multiple ionization cross sections for the three different projectiles were compared to those, obtained from the CDW-EIS and CTMC calculations. For H⁺ and He⁺ impact the experimental multiple ionization cross sections are in good agreement with the CDW-EIS results. Although the classical (CTMC) calculation overestimates the experimental multiple ionization yields in the case of the H⁺ projectile, its results practically coincide with those for N⁺ impact up to four-fold ionization. In general the agreement between experiment and theory becomes worse as the degree of ionization increases. This behavior is attributed to the fact that

both theories are limited within the framework of the independent particle model (IPM), which can not give account for electron-correlations. However, at the level of absolute cross sections the agreement between experimental and theoretical multiple ionization cross sections is satisfactory.

In the framework of an international collaboration we investigated the production of negative fragment-ions in keV energy ion-molecule collisions. We observed that H^+ and H^- peaks originating from the dissociation of the OH^+ projectile contain two overlapping peaks, and analyzed the possible contributing processes. We found that ~0.7 % of the total hydrogen fragment production emerged as H-anions from the collisions. We interpreted the structures in the measured double-differential anion-emission spectra obtained in the collision of O^++H_2O . It was demonstrated by classical elastic scattering simulations that the effect of the electronic excitations and the presence of the further atomic center are non-negligible in the anion production. The structures of anion fragments originating from pure two-body and many-body interactions were identified.

The presented works are fundamental researches with the aim of the deeper understanding of the fundamental processes in ion-molecule collisions. The results can be relevant in several other research-fields such as space sciences, planetary atmospheres, and solid state physics. Some applied fields also can utilize our results. One of them is the radiotherapy.

7. Köszönetnyilvánítás

Jelen dolgozat megírását közvetve vagy közvetlenül nagyon sok személy segítette. Név szerinti felsorolásuk igen hosszadalmas enne, ezért a következőkben csak azon személyeknek mondok név szerint köszönetet, akik közvetlenül is támogatták munkám elkészülését.

Elsősorban témavezetőmnek, *Dr. Sulik Bélának* tartozom köszönettel és hálával a közös munkáért, tevékenységem koordinálásáért, és az építő jellegű beszélgetésekért, melyekből nagyon sokat tanultam.

Köszönet illeti Dr. Juhász Zoltán, és Herczku Péter kollégáimat folyamatosan nyújtott segítségükért, a közös fejlesztések, és mérések jó hangulatáért.

Az elméleti eredményekért, a hasznos beszélgetésekért, segítségért köszönettel tartozom Dr. Gulyás László, és Dr. Sarkadi László kollégáimnak.

Segítőkészségükért és támogatásukért köszönetet szeretnék mondani az Atomi Ütközések Laboratóriumában dolgozó minden kollégámnak.

Köszönet illeti még francia együttműködőinket, köztük is főként Dr. Jean-Yves Chesnelt.

A mérések zavartalan lebonyolítását meg szeretném köszönni a VdG-5 és az ECRIS (Caen) részecskegyorsítók operátorainak.

A nem szakmai segítséget nyújtó emberek támogatása is fontos volt számomra. Ezért meg szeretném köszönni szerető szüleimnek, hogy tanulmányaim rögös útján támogattak. Köszönöm feleségemnek a türelmét, lelki és szellemi támogatását, és azt, hogy lehetővé tette számomra hogy munkaidőn túl is teljes erőbedobással a dolgozat megírására koncentrálhassak.

8. Irodalomjegyzék

- [1] E. Blauth, Physik 147, 228 (1957)
- [2] D. Moe és E. Petsch, Phys. Rev. 110, 1358 (1985)
- [3] P. J. Richardson, J. H. D Eland, P. G. Fournier, D. L. Cooper, J. Chem. Phys. 84, 3189 (1986)
- [4] H. B. Pedersen, C. Domesle, L. Lammich, S. Dziarzhytski, N. Guerassimova, R. Treusch, L. S. Harbo, O. Heber, B. Jordon-Thaden, T. Arion, M. Förstel, M. Stier, U. Hergenhahn, A. Wolf, Phys. Rev. A 87, 013402 (2013)
- [5] U. Werner, K. Beckord, J. Becker, H. O. Folkerts, H. O. Lutz, Nucl. Instr. and Meth. B 98, 385 (1995)
- [6] Z. D. Pesič, J-Y Chesnel, R. Hellhammer, B. Sulik, N. Stolterfoht, J. Phys. B 37, 1405 (2004)
- [7] F. Alvarado, R. Hoekstra, T. Schlathölter, J. Phys. B 38, 4085 (2005)
- [8] J. Rajput, Sankar De, A. Roy, C. P. Safvan, Phys. Rev. A 74, 032701 (2006)
- [9] F. Frémont, C. Leclercq, A. Hajaji, A. Naja, P. Lemennais, S. Boulbain, V. Broquin, J.-Y. Chesnel, Phys. Rev. A 72, 042702 (2005)
- [10] H. Luna, E. G. Cavalcanti, J. Nickles, G. M. Sigaud, E. C. Montenegro, J. Phys. B 36, 4717 (2003)
- [11] K. Nagy, Kvantummechanika, Nemzeti tankönyvkiadó, Budapest, (1978)
- [12] E. Kapuy, és F. Török, Az atomok és molekulák kvantumelmélete, Akadémiai Kiadó, Budapest, (1975)
- [13] I. Hevesi és S. Szatmári, Bevezetés az atomfizikába, JATEPress, Szeged (2002)
- [14] G. Náray-Szabó, Alkalmazott kvantumkémia, Műszaki Kiadó, Budapest, (1979)
- [15] T. Veszprémi és M. Fehér, A kvantumkémia alapjai és alkalmazása, Műszaki Könyvkiadó, Budapest, (2002)
- [16] P. W. Atkins, Fizikai kémia II, Nmzeti Tankönyvkiadó, Budapest, (2002)
- [17] L. D. Landau és E. M. Lifsic, Elméleti fizika III. Kvantummechanika, Tankönyvkiadó, Budapest (1978)
- [18] Sz. Szilasi, Doktori (Ph.D.) értekezés, Debreceni Egyetem, Debrecen (2012)
- [19] L. Tóth, Doktori (Ph. D.) értekezés, Debreceni egyetem, Debrecen (2006)

- [20] D. Chattarj, The theory of Auger transitions, Academic Press London, New York, San Fransisco (1976)
- [21] W. Mehlhorn, Electron spectromerty of Auger and autoionizing states: Experiment and theory University of Freiburg, Germany (1978)
- [22] C. E. Kuyatt, és T. Jorgensen, Phys. Rev. 130, 1444 (1963)
- [23] M. E. Rudd és T. Jorgensen, Phys. Rev. 131, 666 (1963)
- [24] N. Stolterfoht, D. Schneider, D. Burch, H. Wieman, J. S. Risley, Phys. Rev. Lett. 33, 59 (1974)
- [25] W. E. Wilson és L. H. Tohuren, Phys. Rev. A 7, 1535 (1973)
- [26] D. Bunch, H. Wieman, W. B. Ingalls, Phys. Rev. Lett. 30, 823 (1973)
- [27] N. Stolterfoht, R. D. DuBois, R. D. Rivarola, Electron emission in Heavy ion-atom collisions, Springer, Germany (1997)
- [28] S. Suárez, C. Garibotti, G. Bernardi, P. Focke, W. Meckbach, Phys. Rev. A 48, 4339 (1993)
- [29] J. O. P. Pedersen, P. Hvelplund, A. G. Petersen, P. D. Fainstein, J. Phys. B 24, 4001 (1991)
- [30] S. Nandi, A. N. Agnihotri, S. Kasthurirangan, A. Kumar, C. A. Tachino, Phys. Rev. A 85, 062705 (2012)
- [31] N. Stolterfoht, H. Platten, G. Schiwietz, D. Schneider, L. Gulyás, P. D. Fainstein, A. Salin, Phys. Rev. A 52, 3796 (1995)
- [32] P. D. Fainstein, L. Gulyás, F. Martín, A. Salin, Phys. Rev. A 53, 3243 (1996)
- [33] A. N. Agnihotri, S. Kasthurirangan, S. Nandi, A. Kumar, M. E. Galassi, R. D. Rivarola, O. Fijón, C. Champion, J. Hanssen, H. Lekadir, P. F. Weck, L. C. Tribedi, Phys. Rev. A 85, 032711 (2012)
- [34] L. C. Tribedi, A. N. Agnihotri, M. E. Galassi, R. D. Rivarola, C. Champion, Eur. Phys. J. D 66: 303, (2012)
- [35] L. C. Tribedi, P. Richard, Y. D. Wang, C. D. Lin, L. Gulyás, M. E. Rudd, Phys. Rev. A 58, 3619 (1998)
- [36] L. C. Tribedi, P. Richard, L. Gulyás, M. E. Rudd, Phys. Rev. A 63, 062724 (2001)
- [37] L. Sarkadi, U. Brinkmann, A. Báder, R. Hippler, K. Tőkési, L. Gulyás, Phys. Rev. A 58, 296 (1998)
- [38] L. Sarkadi és A. Orbán, Phys. Rev. Lett. 100, 133201 (2008)
- [39] L. Sarkadi és R. O. Barrachina, Phys. Rev. A 71, 062712 (2005)
- [40] L. Gulyás, L. Sarkadi, A. Igarashi, T. Kirchner, Phys. Rev. A 82, 032705 (2010)

- [41] B. Sulik, Cs. Koncz, K. Tőkési, A. Orbán, D. Berényi, Phys. Rev. Lett. 88, 073201 (2002)
- [42] T. Ricsóka, Doktori (Ph.D.) értekezés, Debreceni Egyetem, Debrecen (2007)
- [43] S. Suárez, R. O. Barrachina, W. Meckbach, Phys. Rev. Lett. 77, 474 (1996)
- [44] U. Bechthold, S. Hagmann, J. Ullrich, B. Bethelt, G. Kraft, H. Schmidt-Böcking, Nucl. Instr. and Meth. B 143, 441 (1998)
- [45] H. Rothard, G. Lanzanó, E. De Filippo, C. Volant, Nucl. Instr. and Meth. B 230, 419 (2005)
- [46] B. Sulik és K. Tőkési, Adv. Quantum Chem. 52, 253 (2007)
- [47] B. Sulik, Cs. Koncz, K. Tőkési, Á. Kövér, S. Ricz, Gy. Víkor, J.-Y. Chesnel, N. Stolterfoht, D. Berényi, Nucl. Instr. and Meth. B 154, 281 (1999)
- [48] L. H. Toburen, N. Stolterfoht, P. Ziem, D. Schneider, Phys. Rev. A 24, 1741 (1981)
- [49] E. C. Montenegro, W. S. Melo, W. E. Meyerhof, A. G. de Pinho, Phys. Rev. A 48, 4259 (1993)
- [50] L. Sarkadi, P. Herczku, S. T. S. Kovács, Á. Kövér, Phys. Rev A 87, 062705 (2013)
- [51] Á. Kövér, Gy. Szabó, D. Berényi, D. Varga, I. Kádár, S. Ricz, J. Végh, Phys. Lett. 89A, 71 (1982)
- [52] W. E. Wilson és L. H. Toburen, Phys. Rev. A 11, 1303 (1975)
- [53] A. Itoh, Y. Iriki, M. Imai, C. Champion, R. D. Rivarola, Phys. Rev. A 88, 052711 (2013)
- [54] R. L. Gluckstern, Phys. Rev. 98, 1817 (1955)
- [55] F. Gobet, S. Eden, B. Coupier, J. Tabet, B. Farizon, M. J. Gaillard, M. Carré, S. Ouaskit, T. D. Mark, P. Scheier, Phys. Rev. A 70, 062716 (2004)
- [56] U. Werner, J. Becker, T. Farr, H. O. Lutz, Nucl. Instr. and Meth. B 124, 298 (1997)
- [57] J.-Y. Chesnel, Z. Juhász, E. Lattouf, J. A. Tanis, B. A. Huber, E. Bene, S. T. S. Kovács, P. Herczku, A. Méry, J.-C. Poully, J. Rangama, B. Sulik, Phyr. Rev. A 91, 060701 (2015)
- [58] P. M. Y. Garcia, G. M. Sigaud, H. Luna, M. B. Shah, Phys. rev. A 77, 052708 (2008)
- [59] B. Siegmann, U. Werner, R. Mann, N. M. Kabachnik, H. O. Lutz, Phys. Rev. A 62, 022718 (2000)
- [60] G. H. Olivera, C. Caraby, P. Jardin, A. Cassimi, L. Adoui, B. Gervais, Phys. Med. Biol. 43, 2347 (1998)
- [61] S. W. J. Scully, J. A. Wyer, V. Senthil, M. B. Shah, Phys. Rev. A 73, 040701 (2006)
- [62] W. Wolff, H. Luna, R. Schuch, N. D. Cariatore, S. Otranto, Phys. Rev. A 94, 022712 (2016)

- [63] I. Ben-Itzhak, K. D. Carnes, S. G. Ginther, D. T. Johnson, P. J. Norris, O. L. Weaver, Phys. Rev. A 47, 3748 (1993)
- [64] G. Dujardin, D. Winkoun, S. Leach, Phys. Rev. A 31, 3027 (1985)
- [65] J. Rajput, C. P. Safvan, Phys. Rev. A 84, 052704 (2011)
- [66] M. Tarisien, L. Adoui, F. Frémont, D. Leliévre, L. Guillaume, J.-Y. Chesnel, H. Zhang, A. Dubois, D. Mathur, S. Kumar, M. Krushnamurthy, A. Cassimi, Nucl. Instr. and Meth. B 33, L11 (2000)
- [67] A. L. F. de Barros, J. Lecointre, H. Luna, M. B. Shah, E. C. Montenegro, Phys. Rev. A 80, 012716 (2009)
- [68] Z. Juhász, B. Sulik, F. Frémont, A. Hajaji, J.-Y. Chesnel, Nucl, Instr. and Meth. B 267, 326 (2009)
- [69] R. Wildt, Astrophys. J. 90, 611 (1939)
- [70] D. Field, Astron. Astrophys. 362, 774 (2000)
- [71] S. C. Glover, D. W. Savin, A.-K. Jappsen, Astrophys. J. 640, 553 (2006)
- [72] V. Vuitton, P. Lavvas, R. V. Yelle, M. Galand, A. Wellbrock, G. R. Lewis, A. J. Coates, J.-E. Wahlund, Planet. Space Sci. 57, 1558 (2009)
- [73] F. B. Alarcón, B. E. Fuentes, H. Martínez, Int. J. Mass. Spectrom. 248, 21 (2006)
- [74] O. Yenen, D. H. Jaecks, L. M. Wiese, Phys. Rev. A 39, 1767 (1989)
- [75] Z. Juhász, B. Sulik, J. Rangama, E. Bene, B. Sorgunlu-Frankland, F. Frémont, J.-Y. Chesnel, Phys. Rev. A 87, 032718 (2013)
- [76] E. Lattouf, Z. Juhász, J.-Y. Chesnel, S. T. S. Kovács, E. Bene, P. Herczku, B. A. Huber, A. Béry, J.-C. Poully, J. Rangama, B. Sulik, Phys. Rev. A 89, 062721 (2014)
- [77] F. Avarado, Doktori (Ph. D.) értekezés, Rijksuniversiteit Groningen, Groningen (2007)
- [78] C. Champion, H. Lekadir, M. E. Galassi, O. Fojón, R. D. Rivarola, J. Hanssen, Phys. Med. Biol. 55, 6053 (2010)
- [79] J. Tabet, S. Eden, S. Feil, H. Abdoul-Carime, B, Farizon, M. Farizon, S. Ouaskit, T. D. Mark, Phys. Rev. A 81, 012711 (2010)
- [80] I. Baccarelli, F. A. Gianturco, E. Scifoni, A. V. Solov'yov, E. Surdutovich, Eur. Phys. J. D 60, 1 (2010)
- [81] A. V. Solov'yov, E. Surdutovich, E. Scifoni, I. Mishustin, W. Greiner, Phys. Rev. A 79, 011909 (2009)
- [82] E. Surdutovich, A. V. Yakubovich, A. V. Solov'yov, Eur. Phys. J. D 60, 101 (2010)
- [83] L. Sanche, Eur. Phys. J. D 35, 367 (2005)

- [84] E. C. Montenegro, M. B. Shah, H. Luna, S. W. J. Scully, A. L. F. de Barros, J. A. Wyer, J. Lecointre, Phys. Rev. Lett. 99, 213201 (2007)
- [85] B. Barc, M. Ryszka, J.-C. Poully, E. JabbourAl Maalouf, Z. el Otell, J. Tabet, R. Parajuli, P. J. M. van der Burgt, P. Limao-Vieira, P. Cahillane, M. Dampc, N. J. Mason, S. Eben, Int. J. Mass Spect. 365, 194 (2014)
- [86] B. Barc, M. Ryszka, J. Spurrell, M. Dampc, p. Limao-Vieira, R. Parajuli, N. J. Mason, S. Eden, J. Chem. Phys. 139, 244311 (2013)
- [87] R. Abribes és I. C. Percival, Proc. R. Phys. Soc. 88, 873 (1966)
- [88] K. Tőkési, B. Sulik, N. Stolterfoht, Nucl. Instr. and Meth. B 233, 187 (2005)
- [89] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, L. Sarkadi, L. Gulyás, B. Sulik, Phys. Rev. A 94, 012704 (2016)
- [90] L. Sarkadi, Phys. Rev. A 92, 062704 (2015)
- [91] J. Bang és J. M. Hansteen, Mat. Phys. Medd. Dan. Vid. Selesk. 31, (13), p. 43 (1959)
- [92] B. Sulik, Kandidátusi értekezés, Debrecen, MTA Atomki (1991)
- [93] I. M. Cheshire, Proc. R. Phys. Soc. (London) 84, 89 (1964)
- [94] L. Gulyás, Akadémiai doktori értekezés, MTA Atomki, Debrecen (2005)
- [95] P. D. Fainstein, V. H. Ponce, R. D. Rivarola, J. Phys. B 24, 3091 (1991)
- [96] L. Gulyás, P. D. Fainstein, A. Salin, J. Phys. B 28, 245 (1995)
- [97] L. Gulyás, I. Tóth, L. Nagy, J, Phys. B 46, 075201 (2013)
- [98] L. Gulyás, S. Egrai, H. Ghavaminia, A. Igarashi, Hys. Rav. A 93, 032704 (2016)
- [99] A. N. Agnihotri, S. Nandi, S. Kasthurirangan, A. Kumar, M. E. Galassi, R. D. Rivarola, C. Champion, L. C. Tribedi, Phys. Rev. A 87, 032716 (2013)
- [100] N. Stolterfoht, Phys. Rep. 146, 371 (1987)
- [101] A. Orbán, Doktori (Ph.D.) értekezés, Debreceni Egyetem, Debrecen (2003)
- [102] A. E. S. Green, D. L. Sellin, A. S. Zachor, Phys. Rev. 184, 1 (1969)
- [103] S. Sh. Demes és E. Yu. Remeta, Eur. Phys. J. D , 69:168 (2015)
- [104] N. F. Aguirre, S. Díaz-Tendero, P-A Hervieux, M. Alcami, F. Martin, J. Chem. Theor. , DOI: 10.1021/acs.jctc.6b00984 (2016)
- [105] J. H. Gross, Mass Spectrometry, Springer-Verlag, Berlin (2011)
- [106] Z. Juhász, Phys. Rev. A 94, 022707 (2016)
- [107] Á. Budó, Kísérleti fizika II, Nemzeti Tankönyvkiadó, Budapest (1994)
- [108] K. Simonyi, Elektronfizika, Tankönyvkiadó, Budapest (1973)

- [109] T. Fényes, Atommagfizika, Kossuth Egyetemi Kiadó, Debrecen (2005)
- [110] R. Geller, Electron Cyclotron Resonance Ion Sources and ECR Plasmas, Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia (1996)
- [111] D. Varga, Kandidátusi értekezés, MTA Atomki, Debrecen (1979)
- [112] S. T. S. Kovács, Z. Juhász, P. Herczku, B. Sulik, Act. Phys. Deb. XLVI, 65 (2012)
- [113] J. Y. Chesnel, Z. Juhász, E. Lattouf, J. A. Tanis, B. A. Huber, E. Bene, S. t. S. Kovács, P. Herczku, A, Méry, J.-C. Poully, J. Rangama, B. Sulik, Phys. Rev. A 91, 060701 (2015)
- [114] S. Bohátka, Vákuumfizika és -technika ELFT, Budapest (2008)
- [115] B. Sulik, K. Tőkési, N. Stolterfoht, T. Ricsóka, Gy. Víkor, Sz. Nagy, Z. Berényi, R. Hellhammer, Z. Pesic, D. Berényi, Rad. Phys. Chem. 76, 483 (2007)
- [116] P. Sobocinski, Z. D. Pesic, R. Hellhammer, D. Klein, B. Sulik, J-Y Chesnel, N. Stolterfoht, J. Phys. B 39, 927 (2006)
- [117] H. Martínez és F. B. Yousif, Phys. Rev. A 69, 062701 (2004)
- [118] P. Rawat, V. S. Prabhudesai, G. Aravind, M. A. Rahman, E. Krishnakumar, J. Phys. B 40, 4625 (2007)

Az értekezés témakörében megjelent közlemények

SCI közlemények:

- [1] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, L. Sarkadi, L. Gulyás, and B. Sulik, Dissociative ionization of H₂O molecule induced by medium energy singly charged projektiles, Beküldés alatt a Phys. Rev. A-hoz.
- [2] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, L. Sarkadi, L. Gulyás, and B. Sulik, *Ionization of small molecules, induced by H⁺, He⁺, and N⁺ projektiles: Comparison of experiment with quantum and classical calculations, Phys. Rev. A* 94, 012704 (2016) 2,765²⁰¹⁵.
- J.-Y. Chesnel, Z. Juhász, E. Lattouf, J. A. Tanis, B. A. Huber, E. Bene, S. T. S. Kovács, P. Herczku, A. Méry, J.-C. Poully, J. Rangama, and. B. Sulik, Anion emission from water molecules colliding with positive ions: Identification of binary and many-body prosesses, Phys. Rev. A 91, 060701 (2015) 2,765²⁰¹⁵.
- [4] E. Lattouf, Z. Juhász, J.-Y. Chesnel, S. T. S. Kovács, E. Bene, P. Herczku, B. A. Huber, A. Méry, J.-C. Poully, J. Rangama, B. Sulik, *Formation of anions and cations via a binary-encounter process in OH⁺+Ar collision: the role of dissociative excitation and statistical aspects*, Phys. Rev. A 89, 062721 (2014) 2,808²⁰¹⁴.

A tézisek alapjául szolgáló közlemények egyéb folyóiratokban:

- [5] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, and B. Sulik, *Fragmentation of H2O molecules induced by singly charged projektiles*, Journal of Physics: Conference Series 635, 032115 (2015).
- [6] S. T. S. Kovács, P. Herczku, L. Sarkadi, L. Gulyás, Z. Juhász, and B. Sulik, *Ioninduced ionization of small molecules: comparison of experiment with quantum and classical calculations*, Journal of Physics: Conference Series **635**, 032088 (2015).
- [7] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, B. Sulik, *Fragmentation of CH*₄ molecules induced by 46 keV/u N^+ and N_2^+ projectiles, Journal of Physics: Conference Series **488**, 102017 (2014), (1 oldal).
- [8] Z. Juhász, B. Sulik, S. T. S. Kovács, E. Lattouf, J. Rangama, E. Bene, B. Huber, F. Frémont, A. Méry, J.-C. Poully, P. Rousseau, P. Herczku, J.-Y. Chesnel, A collision process responsible for widespread formation of H anions, Journal of Physics: Conference Series 488, 102024 (2014), (1 oldal).
- [9] S. T. S. Kovács, P. Herczku, L. Gulyás, Z. Juhász, B. Sulik, Absolute fragmentation cross section measurements of small molecules induced by H⁺ and N⁺ ion impact, Acta Physica Debrecina XLVIII, 100 (2014).

- [10] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z, Juhász, B. Sulik, *Fragmentation of* H_2O and CH_4 *induced by* 650 *keV* N^+ *projectiles*, Acta Physica Debrecina **XLVII**, 87 (2013).
- [11] S. T. S. Kovács, Z. Juhász, P. Herczku, B. Sulik, A new setup for molecule fragmentation szudies and the first results from H^++H_2O collisions, Acta Physica Debrecina XLVI, 65 (2012).

Előadások:

- [E1] S. T. S. Kovács, L. Gulyás, P. Herczku, Z. Juhász, B. Sulik, Ionization of N₂ molecules by 1-MeV H⁺ projectile: Search for interference effects in the electron spectra, Photon and fast Ion induced Processes in Atoms, Molecules and Nanostructures (PIPAMON), Debrecen, Magyarország, 2015. március 24-26.
- [E2] S. T. S. Kovács, Molecule fragmentation experiments in Atomki, Complexity from quantum systems to emergent behaviour, Physics Lectures 2012, Debrecen, Magyarország, 2012. december 12.

A tézisek alapjául szolgáló egyéb közlemények:

- [O1] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, B. Sulik, *Fragmentation of* H_2O and CH_4 molecules by the impact of 46 keV/u N⁺ and N₂⁺ projectiles, XXIII. International Symposium on Ion Atom Collisions (ISIAC 23), Peking, Kína, 2013. július 19-22. Book of Abstracts, 46. oldal.
- [O2] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, B. Sulik, *Fragmentation of H₂O molecules induced by H+ and N+ projektiles*, 3nd NANO-IBCT Conference, Boppard, Németország, 2014. október 27-31. Book of Abstracts, 46. oldal.
- [O3] S. T. S. Kovács, P. Herczku, L. Gulyás, Z. Juhász, B. Sulik, *Dissociative ionization of* CH_4 molecules induced by H^+ and N^+ projektiles, 6th Conference on Elementary Processes in Atomic Systems (CEPAS 2014), Pozsony, Szlovákia, 2014. július 9-12. Book of Abstracts, 208. oldal.
- [O4] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z, Juhász, B. Sulik, *Fragmentation of* H_2O *molecules induced by 46 keV/u* N^+ *and* N_2^+ *projectiles*, 11Th European Conference on Atpms Molecules and Photons (ECAMP 2013), Dánia, Aarhus, 2013. június 24-28. Book of Abstracts, 47. oldal.
- [O5] Z. Juhász, B. Sulik, E. Lattouf, S. T. S. Kovács, J. Rangama, E. Bene, B. A. Huber, F. Frémont, A. Méry, J.-C. Poully, P. Rousseau, P. Herczku, J.-Y. Chesnel, A collision process leading to the emission of H⁻ ions from H-containing molecules, 2nd NANO-IBCT Conference, Sopot, Lengyelország, 2013. május 20-24. Book of Abstracts, 83. oldal.
- [O6] J.-Y. Chesnel, Z. Juhász, E. Lattouf, S. T. S. Kovács, J. Rangama, E. Bene, B. Huber,

F. Frémont, A. Méry, J.-C. Poully, P. Rousseau, P. Herczku, B. Sulik, H- formation via a binary encounter process in ion-molecule collisions, XXIII. International Symposium on Ion Atom Collisions (ISIAC 23), Peking, Kína, 2013. július 19-22. Book of Abstracts, 10. oldal.

- [O7] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z, Juhász, B. Sulik, Fragmentation of H₂O and CH₄ molecules induced by atomic and molecular nitrogen ion projectiles, 2nd NANO-IBCT Conference, Sopot, Lengyelország, 2013. május 20-24. Book of Abstracts, 85. oldal.
- [O8] P. Herczku, S. T. S. Kovács, Z. Juhász, L. L. Horváth, F. Gáll, B. Sulik, A specific beamline at a 5 MV electrostatic accelerator for studying ion-biomolecule collisions in the energy region of the Bragg peak, 5th Conference on Elementary Processes in Atomic Systems (CEPAS 2011) Belgrade, Serbia, 2011. június 21 – 25. Book of Abstracts, 80. oldal.

A dolgozatomhoz nem kapcsolódó publikációk:

- [N1] L. Sarkadi, P. Herczku, S. T. S. Kovács, Á. Kövér, Multiple ionization of rare gases by hydrogen-atom impact, Physical Review A 87, 062705 (2013) 2,991²⁰¹³.
- [N2] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, J. Tóth, B. Sulik, *Guiding of Ar⁷⁺ ions through a glass microcapillary array*, Nuclear Instruments and Methods B 354, 71-74 (2015) 1,389²⁰¹⁵.
- [N3] N. Stolterfoht, P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Longterm stable transmission of 3-keV Ne⁷⁺ ions guided through nanocapillaries in polymers, Nuclear Instruments and Methods B 387, 96-102 (2016) 1,389²⁰¹⁵.
- [N4] Z. Juhász, S. T. S. Kovács, P. Herczku, R. Rácz, S. Biri, I. Rajta, G. A. B. Gál, S. Z. Szilasi, J. Pálinkás, B. Sulik, *Guided transmission of 3 keV Ar7+ ions through dense polycarbonate nanocapillary arrays: Blocking effect and time dependence of the transmitted neutrals*, Nuclear Instruments and Methods B 279, 177-181 (2012) 1,266²⁰¹².
- [N5] L. Ábrók, T. Buhr, Á. Kövér, R. Balogh, D. Hatvani, P. Herczku, S. T. S. Kovács, S. Ricz, A method for intensity calibration of an electron spectrometer with multi-angle detection, Nuclear Instruments and Methods B 369, 24-28 (2016) 1,389²⁰¹⁵.
- [N6] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, S. Biri, R. P. Rácz, B. Sulik, Guiding of 3 keV Ar⁷⁺ ions by polycarbonate nanocapillaries and glass microcapillaries, Acta Physica Debrecina XLVI, 57 (2012).
- [N7] P. Herczku, Z. Juhász, N. Stolterfoht, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Surface conductivity and charge migration on the inner capillary wall, Acta Physica Debrecina XLVII, 67 (2013).