

1949

# Ionbombázással keltett és iondetektálással vizsgált folyamatok: a többszörös ionizációtól az önszervező ionterelési mechanizmusig

Egyetemi doktori (PhD) értekezés

Herczku Péter

Témavezető:

Dr. Sulik Béla

DEBRECENI EGYETEM

Természettudományi és Informatikai Doktori Tanács

Fizikai Tudományok Doktori Iskolája

Debrecen, 2018

### 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 és Informatikai Doktori Tanács Fizikai Tudományok Doktori Iskolájának Atomés 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. 2018. október 30.

> Herczku Péter doktorjelölt

Tanúsítom, hogy Herczku Péter doktorjelölt 2011- 2018 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, 2018. október 30.

Dr. Sulik Béla témavezető

# Ionbombázással keltett és iondetektálással vizsgált folyamatok: a többszörös ionizációtól az önszervező ionterelési mechanizmusig

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

# Írta: Herczku Péter okleveles fizikus

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

#### Témavezető: Dr. Sulik Béla

| A doktori szigorla | ati bizottság: |  |
|--------------------|----------------|--|
|                    | _              |  |

| elnök: | Dr. Nagy Ágnes   |  |
|--------|------------------|--|
| tagok: | Dr. Halász Gábor |  |
|        | Dr. Horváth Ákos |  |

A doktori szigorlat időpontja: 2016. október 28.

| Dr |  |
|----|--|
| Dr |  |
|    |  |
| Dr |  |
|    | Dr<br>Dr<br>Dr<br>Dr<br>Dr<br>Dr<br>Dr<br>Dr |

Az értekezés védésének időpontja: 201.....

# Tartalomjegyzék

| 1. Bevezetés  | 1        |
|---|----------|
| 2. lonterelés kapillárisokkal - irodalmi áttekintés   | 4        |
| 2.1 Előzmények: Ion-felület kölcsönhatások vizsgálata az "üreges" atorr<br>spektroszkópiájával            | າok<br>4 |
| 2.2 Az ionterelődés felfedezése, kutatási irányok   | 7        |
| 2.3 A terelés általános jellemzői   | 12       |
| 2.4 Kísérleti módszerek   | 16       |
| 2.4.1 Kapilláris minták előállítása   | 16       |
| 2.4.2 Mérési elrendezések   | 18       |
| 2.5 Kísérleti eredmények  | 20       |
| 2.5.1 Töltésállapot eloszlás meghatározása  | 20       |
| 2.5.2 A kapillárisok töltődésének és kisülésének vizsgálata   | 21       |
| 2.5.3 Átviteli profilok   | 23       |
| 2.5.4 Az ionátvitel áramfüggése   | 26       |
| 2.5.5. Nemlineáris töltés-áram kapcsolat  | 27       |
| 2.5.6 Az ionátvitel dinamikája  | 29       |
| 2.5.7 Semleges részecskék kibocsátása   | 31       |
| 2.5.8 A kapillárisok blokkolódása és a sűrűségi hatások   | 32       |
| 2.6 A kapillárisok terelésének modellezése, szimulációk   | 34       |
| 3. Kísérleti eszközök   | 36       |
| 3.1 Az 1 MV és 5 MV névleges csúcsfeszültségű Van de Graaff típusú iongyorsítók                           | 36       |
| 3.2 Az atomi céltárgyak ionizációjának vizsgálatára, a VdG-1 nyalábvége<br>alkalmazott kísérleti eszközök | en<br>38 |
| 3.3 Elektron ciklotronrezonanciás ionforrás (ECR, vagy ECRIS)   | 40       |
| 3.4 Az ECR ionforrás nyalábvégén található mérőrendszer   | 42       |
| 4. Eredmények   | 44       |

| 4.1 Nemesgázok többszörös ionizációja H⁺és H⁰ lövedékekkel való    |      |
|--|------|
| ütközésekben   | . 44 |
| 4.2 Kompakt párhuzamos síktükör spektrométer tervezése             | . 49 |
| 4.3 A kapillárisok ionterelésének vizsgálata                       | . 62 |
| 4.3.1 A nanokapillárisok letöltődésének vizsgálata                 | . 64 |
| 4.3.2 Nanokapillárisok elektrosztatikus elzáródása                 | . 73 |
| 4.3.3 Az átvitel energiafüggésének vizsgálata blokkolódó mintáknál | . 83 |
| 4.3.4 Új szimulációs modell kidolgozása                            | . 92 |
| 4.3.5 Nagyrendezettségű üveg minta átvitele                        | . 95 |
| 5. Összefoglalás   | 102  |
| 6. Summary   | 106  |
| 7. Köszönetnyilvánítás   | 111  |
| 8. Irodalomjegyzék   | 112  |
| Az értekezés témakörében megjelent közlemények                     | 124  |

#### 1. Bevezetés

Az ionok számos kémiai folyamat kulcsszereplői. Környezetükből kiszakított, szabad ionokról a mindennapi életben kevés szó esik, bár a természetben meglehetősen gyakran fordulnak elő. A látható univerzum túlnyomó része plazmából áll, amelyben nagy arányban találhatók szabad elektronok és különböző ionizáltsági fokú szabad ionok. A csillagok sűrű plazmája gyakorlatilag teljesen ionizált. A világűr hatalmas kiterjedésű csillagközi gázfelhőiben is az atomok és molekulák jelentős része van ionizált állapotban, és a lejátszódó ütközések komoly szerepet játszanak ennek a híg plazmának a nagyléptékű folyamataiban.

Földünket is folyamatosan bombázza a Nap által kibocsátott ionokból álló napszél, valamint a mély űrből származó kozmikus sugárzás ionjai. Földi élet fejlődésének és fennmaradásának meghatározó tényezője a Föld mágneses terének a napszél ionjaira gyakorolt eltérítő hatása, az ionoszféra léte, mely napkitörések alkalmával a sarki fény formájában láthatóvá is válik. A földi környezetben is találkozhatunk természetes úton keletkezett ionokkal, például villámláskor, de vannak ionok a tűz lángjában is.

Az ionok kémiai és fizikai szerepének felismerése óta tanulmányozásuk és előállításuk, kölcsönhatásaik megértése rohamléptekkel fejlődött. Mivel az ionok létrehozása önmagában is nagy energiákat igényel, az előre lépések általában az élvonalbeli technológiák fejlődésével jártak. Az ionforrások, gyorsítók és tárológyűrűk technikájának fejlődése volt és ma is a magfizika és a részecskefizika kibontakozásának egyik kísérleti pillére. Gondoljunk csak a CERN-re, vagy a Darmstadtban építés alatt álló ion-antiproton tárológyűrű komplexumra (Facility for Antiproton and Ion Research, FAIR).

Az ionok a technikában és a gyógyászatban is jelentős szerepet játszanak. A technológiai plazmák az anyagmegmunkálás megszokott eszközei, és ma is az egyik legnagyobb kihívás a fúziós energiatermelés megvalósítása. Az anyagok ionbesugárzás hatására végbemenő változásai számos területen létfontosságúak. Gyorsított ionokkal történő besugárzáson alapul számos analitikai módszer (pl. részecske-indukált röntgen és gamma emisszió, PIXE és PIGE; Rutherford viszszaszórás, RBS, kis és közepes energiájú ion-szórás, LEIS és MEIS), beleértve a néhányszor tíz nanométeres laterális feloldást adó ion-nanoszondákat is. A pontosan fókuszált ionnyalábokkal mikro és nanoszerkezeteket alakítanak ki.

Az ionsugárzás roncsoló hatása is több szempontból vizsgálandó terület. Az emberi űrutazás realitásának ez az egyik kulcskérdése. De a földi kommunikáció is leginkább a Föld körül keringő műholdakra épül, melyek folyamatosan ki vannak téve az űrből érkező ionokkal történő ütközéseknek. A gyógyászatban a nehézion terápia az egyik legígéretesebb módszer a népbetegségnek számító daganatos megbetegedések kezelésére. A gamma-besugárzással ellentétben, mely a bőrfelülethez érve azonnal nagymennyiségű energiát ad át, a nehézionok az energiájuk nagyobb részét bizonyos behatolási mélység elérése után adják át. Így egy testen belüli tumor az egészséges szövetek kisebb besugárzott dózisával kezelhető. A folyamatok részleteit azonban még fel kell térképeznünk.

Számos alkalmazásban, így a sugárterápia tervezésénél alapvető, hogy ismerjük a különböző folyamatokra vonatkozó lövedék-céltárgy hatáskeresztmetszeteket. Amennyiben egy ütközés "termékei" ionok, akkor – függetlenül attól, hogy milyen folyamatban (pl. foton-molekula kölcsönhatás) jöttek létre – a kilépő részecskék tulajdonságainak meghatározásához gyakran speciális technikák kifejlesztése szükséges. A spektrométerek azok az eszközök, melyekkel az ionok, elektronok energiáját, töltésállapotát, stb. meg lehet határozni. Gyakran kell több reakció-terméket koincidenciában mérni, a folyamatok differenciális analízise érdekében.

Az ütközéses kísérletek során a lövedék és céltárgy összetételétől függően igen sok és bonyolult folyamat lejátszódhat. A legegyszerűbb ilyen folyamatok például a direkt ionizáció, a céltárgy gerjesztése, vagy a lövedék által történő elektronbefogás a céltárgyról. Ezek akkor is lejátszódhatnak, ha a céltárgy egy atom, és a lövedék strukturálatlan ponttöltésnek tekinthető. Az elsődleges folyamatot (pl. elektronbefogás) ilyenkor is követhetik másodlagos, relaxációs folyamatok. Ilyen például az Auger-folyamat, vagy az autoionizáció. Ezek eredményeként a céltárgy ionok töltésállapota nagymértékben megváltozhat. Elektronokat is hordozó lövedék esetén a fenti folyamatok a lövedék oldalán is lejátszódhatnak. Ha az egyik, vagy mindkét ütköző partner molekula, elsődleges és másodlagos folyamatként is megjelenhet a molekulák fragmentációja, semleges, vagy ionizált töredékek kilépése az ütközésből. Ion-felület kölcsönhatások esetén a lehetőségek még változatosabbak. Dolgozatomban az MTA Atommagkutató Intézetben (Atomki) végzett, a tárgykörhöz tartozó kutatási és fejlesztési munkáimról számolok be. Az intézet Magyarország gyorsítóközpontjának tekinthető, erős magfizikai, ütközéses atomfizikai, ionnyaláb-fizikai és ionfizikai hagyományokkal, témákkal. Segédmunkatársként és PhD hallgatóként több kutatásba is bekapcsolódtam, ezekből kerültek ki a most ismertetésre kerülő, saját eredmények. A kísérleteket az Atomki több gyorsítójának nyalábvégén végeztük.

Az első munkában atom-atom, illetve ion-atom ütközéses kísérleteket végeztünk a 75-300 keV lövedékenergia tartományon az 1 MV-os csúcsfeszültségű Van de Graaff (VdG-1) típusú gyorsító nyalábvégén. A céltárgyak nemesgáz atomok (He, Ne, Ar és Kr) voltak. Vizsgálatunk fókuszában az árnyékolt, semleges H<sup>0</sup> lövedékben az elektron ütközésben játszott szerepe állt. A mérések folyamán a céltárgy ionokat a töltésállapotuk szerint szétválogatott szórt lövedékkel koincidenciában vizsgáltuk. Azért, hogy a lövedék elektronjának szerepe világosan látszódjon, a méréseket proton lövedékkel is elvégeztük, azonos paraméterekkel. A mért adatokat elméleti számolások (CTMC és nCTMC) eredményeivel összevetve elemeztük.

Az ion-molekula ütközéses kísérletekben, melyeket az Atomki VdG-5 típusú gyorsítójának nyalábvégén végeztük, molekuláris céltárgyak lassú fragmentumait vizsgáltuk. Ezek különböző folyamatok révén jöhetnek létre: gerjesztés, ionizáció, de akár többszörös ionizáció, vagy a lövedék és céltárgy között fellépő töltéscsere is felelős lehet a kialakulásukért. Ezekhez a mérésekhez *kifejlesztettem és megépítettem egy elektrosztatikus spektrométert*. Ennek az eszköznek speciális követelményeknek kellett megfelelnie azért, hogy a mérési eredmények megbízhatók legyenek. Az egyik legfontosabb követelmény az volt, hogy a keletkezett fragmentumokat az ütközések után minél hamarabb detektáljuk, vagyis a repülési úthossz az ütközéstől a detektorig a lehető legrövidebb legyen. A molekula-fragmentációs kísérletek eredményei egy másik doktori disszertáció alapjai, így az eredményeket itt csak érintem, *saját eredményként csak a spektrométer tervezéséről, építéséről és kalibrációjáról számolok be*.

A dolgozat legnagyobb részében azokat a munkákat ismertetem, melyeket a szigetelő nanokapillárisok ionterelési tulajdonságainak vizsgálatában végeztem. Ez egy széles körben kutatott téma, mely az ion-felület kölcsönhatások témakörébe sorolható, de igazi érdekessége az, hogy egy önszervező mechanizmus megismerését is megcélozza. A kísérleteket az Atomki Elektron-ciklotronrezonanciás (ECR) ionforrásának nyalábvégén végeztük, részben nemzetközi együttműködés keretében. A munka nehézségét az adja, hogy kevés mérhető mennyiségből kell megérteni, hogy mi zajlik a nanokapillárisok belső felületén, amikor oda töltések rakódnak le. Az önszerveződő folyamat megértésének kulcsa ennek a mechanizmusnak legalább hozzávetőleges ismerete. Az eredményeket ezért nem tekinthetjük lezártnak, arról számolok be, hol tartunk ezen az úton.

A dolgozat három témakört érint, melyeknek az előzményei, irodalmi hátterei között csak laza kapcsolat van. A könnyebb olvashatóság érdekében úgy gondolom az a célszerű, ha az atomi ütközések vizsgálatában és a spektrométer fejlesztésében végzett munkáimhoz tartozó részek maguk tartalmazzák azok rövid bevezetőjét. Az irodalmi áttekintés fejezetét a legnagyobb témakör, a nanokapillárisok ionterelése elemzésének szentelem.

A dolgozat felépítése a következő: A második fejezetben áttekintem a szigetelő nanokapillárisok ionterelésének vizsgálatáról szóló irodalmat, és a jelen vizsgálataim motivációját. A harmadik fejezet a mérőrendszerek leírását tartalmazza. A negyedik fejezetben írom le az elért eredményeimet részletesen, a tézispontoknak megfelelő sorrendben. A nemesgázatomokon végzett kísérletekkel kezdem, ezt követi a spektrométer fejlesztéséről szóló rész, majd több pontba szedve mutatom be a nanokapillárisok ionterelésének vizsgálatában elért eredményeimet, ez utóbbi teszi ki az eredmények rész legnagyobb hányadát.

# 2. Ionterelés kapillárisokkal - irodalmi áttekintés

# 2.1 Előzmények: Ion-felület kölcsönhatások vizsgálata az "üreges" atomok spektroszkópiájával

Az ionterelési jelenség felfedezéséhez az ion-felület kölcsönhatások vizsgálata vezetett. A kilencvenes években több laboratórium együttműködésével vizsgálták néhány keV-es energiájú, erősen töltött ionok (highly charged ion, HCI) szilárd anyagok felületébe történő becsapódását [1].

A kis szögekben becsapódó, elektronjaitól teljesen, vagy majdnem teljesen megfosztott ionok a felülethez közeledve, abból elektronokat fognak be. A befogás többnyire magasan gerjesztett állapotokba történik. Azt tapasztalták, hogy átmenetileg belül üres ionok, sőt semleges atomok, úgynevezett "hollow atom"-ok is kialakulhatnak [1]. Magyarul erre talán az üreges atom kifejezés használata a legelfogadhatóbb. Különleges tulajdonságuk, hogy elektronjaik többsége nagy főkvantumszámú állapotban van, míg belső elektronhéjaik nem, vagy alig betöltöttek. Ezek az atomok (ionok) igen magasan gerjesztett állapotú objektumok, melyek életideje tipikusan néhány száz femtoszekundumos (fs), ugyanakkor néhány százalékuknál meglepően nagy lehet, akár nanoszekundumos (ns) nagyságrendű is [2]. Ez milliószorosa a domináns relaxációs csatorna, az Auger folyamat tipikus életidejének.

Ezen atomok (ionok) keletkezése, legerjesztődése és elbomlása bonyolult, többlépcsős folyamatok összessége. A szcenárió a 2.1.1. ábrán látható [3], ahol az üreges atomok a felület megközelítésének szakaszában formálódnak és kezdenek relaxálódni. Ez önmagában is igen összetett folyamat. A rezonáns elektronbefogások az ion magasabb kvantumszámú héjaira történnek. Az elektronok többsége valamilyen Auger-folyamat során kerül alacsonyabb energiájú állapotba, ez elektronemisszióval jár, és újabb befogás követheti. A röntgenfolyamat is jelen van, de nem túl nagy rendszámú lövedékek esetén a súlya kisebb. A felület elérésekor a lövedék általában már semleges, vagy közel semleges, de még erősen gerjesztett állapotban van, ennek további fejlődése azonban itt megszakad.

A becsapódás nemcsak a gerjesztett állapotok fejlődésének további megfigyelését teszi lehetetlenné. A becsapódással bonyolult folyamatok sokasága indul el. Az akkor és azt követő felület alatti ütközésekből kilépő részecskék száma általában jóval nagyobb, mint a közelítő szakasz relaxációs termékeinek (elektronok, fotonok) hozama. Ha tehát a befogásokkal létrejött üreges atomok legerjesztődésének dinamikáját kívánjuk vizsgálni, közvetlenül a becsapódás előtt valahogy szabad térbe kell juttatni őket, és csak a belőlük kilépő részecskéket észlelni, a becsapódás utáni intenzív részecske-emisszió háttere nélkül. Hosszú élettartamú állapotok esetén ez az állapot elbomlási időpontjának megfigyelését is lehetővé teszi. Ismert ionsebesség esetén ez az idő a szabad repülés úthosszából határozható meg a nyalábirányra merőlegesen emittált elektronok és fotonok detektálásával. Az elv hasonló ahhoz, ahogy az úgynevezett beam-foil spektroszkópiában vizsgálták a hosszú élettartamú gerjesztett ionállapotok bomlását [4], de üreges atomok esetén a megvalósítás módja nem volt nyilvánvaló. Egyetlen lépcsős



**2.1.1 ábra**: Az üreges atomok keletkezésének és legerjesztődésének összetett folyamata [3]. A röntgenemisszió az ábrán nem szerepel, de az ütközés minden fázisában jelen van, igaz az elektronemissziónál többnyire kisebb intenzitással. A rövidítések jelentése: KE (Az ion kinetikus energiája által fedezett elektronemisszió); PE (Az ion potenciális energiája által fedezett elektronemisszió); AI (Autoionizáció); AN (Auger-neutralizáció); AD (Augerlegerjesztődés)

felület élét elhagyó ionok száma túl kevés volt a mérésekhez. Az élek hatásos hosszát úgy növelték meg, hogy a nyaláb útjába helyezendő anyagban kapillárisokat alakítottak ki. Amennyiben ugyanis a kapillárisok tengelye közel párhuzamos a nyaláb tengelyével, azt várhatjuk, hogy az ionok jelentős része üreges atomként, erősen gerjesztett állapotban hagyja majd el a kapillárisok kimenetét, és folytatja útját.

Az első ilyen mérésekben Yamazaki és munkatársai [5] az üreges atomok létrehozására szigetelő anyagban kialakított, néhány száz nanométer átmérőjű kapillárisok sokaságát használták. Az általuk használt anyag alumínium-oxid volt, ebben növesztéses technikával állították elő a kapillárisokat [6]. A lövedék lassú, nagytöltésű (9 keV/u, Ne<sup>9+</sup>) ion volt. Annak érdekében, hogy a bejövő ionnyaláb elektrosztatikusan ne töltse fel a minta (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) felületét, folyamatosan egy izzókatódból származó, kisenergiájú elektronokkal árasztották el a felületet. A kapillárisok kimeneti élei közelében létrejövő üreges atomok (-ionok) száma kis nyalábátmérő esetén is elegendő volt ahhoz, hogy szabad repülési fázisban, vákuumban vizsgálják azok bomlását, tulajdonságait, élettartamát.

Hasonló kísérleteket fémekben (Ni és Au) kialakított kapillárisokkal is végeztek [1]. Ezek a mérések jobb statisztikájúak és zavaró elektromos terektől mentesek voltak, alkalmasak arra, hogy a folyamatok részleteit is vizsgálják a kibocsátott elektronok, valamint a kisugárzott fény- és röntgen-sugárzás detektálásával, mérésével. Az elmélet is fejlődött. A különböző számítások, szimulációk [7, 8, 9] jó közelítéssel visszaadták a kísérletileg mért adatokat.

A kétezres évek elején az üreges atomok (-ionok) kutatásának iránya egyre inkább a nagytöltésű ionoknak a szigetelő felületekkel történő kölcsönhatásainak vizsgálata felé fordult. Ilyen, kapillárisokat tartalmazó minták vizsgálata közben fedezték fel az ionterelődés jelenségét.

#### 2.2 Az ionterelődés felfedezése, kutatási irányok

Az első közlemény, mely nanoméretű szigetelő kapillárisok kötegein áthaladó nagytöltésű ionok terelődéséről adott számot, egy konferencia-előadás volt, Stolterfoht-tól és munkatársaitól [10]. A kapillárisokat tartalmazó mintát egy kereskedelemben is kapható szűrőfólia előállításának módszerével készítették, nagy energiájú nehézionok nyomainak maratásával.

Már az első mérésekben tapasztalták, hogy a nyalábirányhoz képest megdöntött fóliák akkor is átengedték az ionokat, amikor ez geometriailag nem lett volna lehetséges. Ez a kísérlet még nem szolgáltatott megbízható eredményt, de az eredményekből levont következtetés, nevezetesen, hogy az ionok terelődnek, már helyes volt. Az ezt követő szisztematikus munkáról Stolterfoht és munkatársai egy 2002-ben megjelent Physical Review Letters közleményben [11] számoltak be, amelyben már értelmezést is adtak eredményeikhez. Ebben a közleményben a szerzők megmutatták, hogy a kapillárisokba bejutó ionok döntő többsége erősen megdöntött kapilláris minták esetén is eredeti töltésállapotában, eredeti energiáját megőrizve haladt át a kapillárison. Ez azért volt meglepő eredmény, mert ismert tény volt, hogy egy nagytöltésű ion a felülettel kölcsönhatásba lépve, onnan a lehető leghamarabb igyekszik a semlegesítődéshez elegendő elektront felvenni. Megmutatták továbbá, hogy a jelenség önszerveződő módon jön létre.



**2.2.1 ábra:** A PET mintában lévő kapillárisokon átvitt Ne<sup>7+</sup> ionok szögeloszlása. A kapillárisok dőlésszögét jelezték az ábrákon. A pontok a kísérletileg mért értékeket, a folytonos vonalak pedig Gauss-függvény illesztéseket reprezentálnak. A 0°-körüli keskeny csúcsokat ezüst bevonatú kapillárisokon mérték [11].



**2.2.2 ábra:** A Ne<sup>q+</sup> ionok töltésállapot szerinti eloszlása, miután a Ne<sup>7+</sup> ionok áthaladtak a PET kapillárisokon. A különböző csúcsoknál megadták, hogy mely töltésállapotoknak felelnek meg. Ezeket a méréseket két különböző dőlésszögnél  $\Psi=0^{\circ}$ és  $\Psi=5^{\circ}$  végezték [11].

A 2.2.1 ábrán látható a leglényegesebb eredményük. A megfigyelési és dőlési szögeket ennek megértéséhez, vagyis a mérési geometriát a 2.2.2. ábra felső része mutatja. A mért ionintenzitást a megfigyelési szög függvényében tüntették fel. Ezeket az intenzitás-eloszlásokat, amit átviteli profilnak nevezünk, a kapilláris minta több dőlésszögénél (a minta szöghelyzete a nyalábirányhoz képest) is felvették. Ezek a dőlésszögek vannak jelölve a görbék tetejénél.

A minta polietilén-tereftalát (PET) anyagú fólia volt, amiben a kapillárisokat úgy alakították ki, hogy a fóliát nagyenergiájú ionokkal (1 GeV Xe) sugározták be, majd az ionnyomokat NaOH oldatban kémiailag maratták. A maratással 100 nm átmérőjű, a fólia felületére merőleges kapillárisokat hoztak létre. A minta vastagsága, így a kapillárisok hossza 10 µm volt. A hosszúság és átmérő alapján kiszámolható, hogy az ionok már ~0,5°-tól nagyobb dőlésszög esetében nem tudnak egyenes vonal mentén áthaladni a kapillárisokon. Ezt ezüsttel bevont kapillárisokkal kapott keskeny csúcs jelzi, fém falak esetén ugyanis nem alakulhat ki ionterelés, csak az egyenes vonalban, szabadon mozgó ionok juthatnak át. Lényeges jellemzője az ionterelésnek, hogy az átviteli profilok maximuma minden esetben a beállított dőlésszöghöz nagyon közel esett. Ebből arra következtettek, hogy az ionok többsége a tengellyel párhuzamosan ment át a kapillárisokon. Jelentős átvitelt figyeltek meg még a nagy, 10°-ot meghaladó dőlésszögek esetében is. Ugyanakkor az is kiderült, hogy az átjutó ionok jóval szélesebb szögtartományban lépnek ki, mint a fém kapillárisokból, tehát a kimenet közelében fókuszálási effektusok lépnek fel. Ezek a megfigyelések voltak a kapillárisok ionterelésére vonatkozó kutatások kiindulópontjai.

A 2.2.2 ábrán a kapillárisokon átjutott 3 keV-es Ne<sup>q+</sup> ionok töltésállapot szerinti eloszlása látható. Az alacsonyabb töltésállapotokat a kapilláris falával létrejött töltéscserélő kölcsönhatások alakították ki. A spektrumokat 0° és 5° dőlésszögnél vették fel, a megfigyelési szöget a dőlési szöggel egyenlőre állítva ( $\theta = \psi$ ). A  $\psi = 0$ °-nál, a PET mintán áthaladt ionok töltésállapot spektruma hasonló ahhoz, amit fémben (Ni) kialakított kapillárisokon keresztülhaladt ionoknál figyeltek meg korábban [12]. Látható, hogy az átvitt ionok domináns töltésállapota 7+, míg a további töltésállapotok intenzitása 1 % alatti. Hasonló eredményeket kaptak később, polikarbonát (PC) mintákban kialakított kapillárisok esetében is [13].

A kapillárisokat 5°-al megdöntve, azt tapasztalták, hogy a töltésállapoteloszlás alig változott. Az eredeti 7+ töltésállapot maradt a domináns, a további töltésállapotoknak ekkor sem volt jelentős szerepe. Az ionok tehát akkor sem közelítették meg a kapillárisok falát néhány nm-nél jobban, amikor irányt kellett változtatniuk.



**2.2.3 ábra:** Az átvitt Ne7+ intenzitásának időfejlődése. Az ábra a nyalábirányhoz képest 10 fokban megdöntött PET kapillárisok fel- és letöltődési jelenségét mutatja be. A 10 perces feltöltési szakasz után a nyalábot kikapcsolták és csak rövid tesztimpulzusokkal mintavételezték az átvitel időbeli csökkenését [11].

Ebben az első munkában [11] is vizsgálták már, hogyan fejlődik az ionátvitel az eltelt idővel. Ezt a 2.2.3 ábra mutatja. Az átvitel nulláról indult, és rövid, körülbelül 10 perces feltöltési idő alatt elérte az egyensúlyi állapotot. Ezt követően a nyalábot kikapcsolták és csak rövid tesztimpulzusokkal monitorozták az átviteli tulajdonság alakulásának időbeli fejlődést. Azaz, rövid impulzusokkal vizsgálták, hogy a feltöltés megszüntetése után mekkora átviteli intenzitás mérhető. Azt tapasztalták, hogy az idő múlásával az átvitt ionok száma ugyan csökkent, de még órákkal a feltöltő nyaláb kikapcsolása után is volt mérhető átvitt intenzitás. A tapasztalt időfüggést egy egyszerű, lineáris differenciálegyenlet analóg megoldásával közelítették.

Stolterfoht és munkatársai az ionterelést olyan önszerveződő folyamatként értelmezték, melyet a kapillárisok belső falán, a besugárzó ionok által lerakott töltés határoz meg. Amikor a kapilláris tengelye a nyaláb irányával valamekkora szöget zár be, akkor a kapilláris bejáratánál az ionok egy töltött foltot hoznak létre. A bejárat közelében kialakuló folt addig növekszik, míg az általa létrehozott elektromos mező elegendően nagy lesz ahhoz, hogy az ionokat a kapilláris tengelyének irányába térítse. Ekkor a töltéslerakás ebbe a foltba olyan mértékre csökken, ami kiegyensúlyozza a kapilláris anyagának vezetőképessége miatti töltéselfolyást, és a töltésfolt (valamint annak eltérítő tere) stabilizálódik, így alakul ki az állandó átvitel. Vagyis a beeső ionok saját maguk alakítják ki a többi iont a kapilláris kimenete felé terelő elektromos mezőt.

A fentebb vázolt első munkában az ionterelés számos lényeges vonását feltárták. A közlemény nagy érdeklődést váltott ki, és több kutatócsoport is vizsgálni kezdte a jelenségkört. Stolterfoht csoportjának további szisztematikus kutatásaiban kezdetben szintén PET céltárgyak szerepeltek [14-32]. Más laboratóriumokban a PET mellett további anyagokból készült kapilláris mintákat is vizsgáltak, mint például a szilícium-dioxid (SiO<sub>2</sub>) [33-35], alumínium-oxid (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) [36-43], vagy a polikarbonát (PC) [44-46], illetve csillám [47, 48]. Ezekben rendre egyenes kapillárisokat alakítottak ki. Hamarosan vizsgálni kezdték a puha anyagokból kialakított, hajlított kapillárisokat is [49]. Megfigyelték az ionok terelődését sík üveglapok között [50-54], valamint egyedi kapillárisokban is [55-61]. Ezeknek több fajtáját is vizsgálták, több mérettartományban. Általában üvegből készülnek, van egyenes, melynek az átmérője állandó, kúpos, illetve húzással készült, tölcséres alakú is. Az utóbbi már gyakorlati alkalmazást is nyert: az általa szolgáltatott néhány mikronos átmérőjű protonnyalábbal élő sejtek részeit lehet szelektíven besugározni, és a sugárzás hatását követni [62].

A kísérleti eredmények gyarapodása mellett gyorsan kialakult a jelenségkör elméleti vizsgálata is. A Bécsi Műszaki Egyetem kutatócsoportja részletes szimulációkat dolgozott ki az ionterelési mechanizmus modellezésére [63-69]. Ezekben a munkákban a felületbe csapódott töltések mozgását diffúziós, véletlenszerű, termikus mozgásnak tekintették. A szimulációk másik változatát N. Stolterfoht dolgozta ki, itt a felületre lerakott töltések a kialakult elektromos tér által vezérelt módon mozognak, sodródnak [70-74].

A lassú, nagytöltésű ionok mellett egyéb részecskék terelődését is részletesen tanulmányozták. Elektronok terelődését vizsgálták Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [75-77] és PET [78-84] kapilláriskötegekben is. Vizsgálták az elektronok mozgását egyedi, egyenes és kúpos geometriájú SiO<sub>2</sub> és más üveg [85-95] kapillárisokban is. Az egyszeresen töltött negatív ionoknál terelődést nem tapasztaltak [96-100].

A terelés jelenségét vizsgálták MeV-es, nagyenergiájú, protonokkal és könnyű ionokkal is [101-107]. Nagyenergiájú ionok terelését vizsgálták egyedi, kúpos és tölcsérszerű kapilláris céltárgyakon is [108-116], ezek körébe esik a fentebb említett sejtbesugárzási technika kidolgozása [62]. Próbálkozások történtek különböző egzotikus részecskék, müonok [117, 118] és a pozitronok [119, 120] terelésére is, ahol elsősorban az egzotikus részecskék nyalábjainak sűrítését szerették volna elérni, tudomásom szerint eddig gyakorlati eredmény nélkül. A töltött részecskék szigetelő kapillárisokkal való terelésében elért eredményeket két nemrég megjelent áttekintő cikk is összefoglalja [121, 122].

A jelen dolgozatban csak olyan munkák szerepelnek, melyekben keV-es energiájú, pozitív ion lövedékeket terelünk kapilláris-kötegek segítségével. A továbbiakban az irodalmi áttekintésben is erre a területre koncentrálok, a másfajta lövedékekkel és egyedi kapillárisokkal kapcsolatos munkák ismertetésére nem térek ki.

#### 2.3 A terelés általános jellemzői

Az ionok terelődése a kapillárisokban önszerveződő módon jön létre. A jelenséget a kapillárisok belső falának elektromos feltöltődése hozza létre. A kapillárisba néhány fokos szögben beérkező ionok beleütköznek a kapilláris falába, ahol kezdetben leadják az összes töltésüket, semlegesítődnek [123-125]. A nagytöltésű ionok a felületből elektronokat vesznek fel. Egy elektron kiszakításakor a felületen pozitív töltésű elektronhiány (lyuk) keletkezik. Nagytöltésű ionok esetén a keletkező lyukak gyors folyamatban elrendeződnek egy kis (néhány nm-es méretű) töltésfoltban [63]. Ennek a kis foltnak az elektromos tere kissé módosítja a következő ion pályáját, amely így a kapilláris bejáratától némileg távolabb ütközik a falba, és ott adja le töltését. Így fokozatosan kialakul egy nagyobb töltésfolt, amelynek egyre nagyobb tere van. Amikor ez az ionokra nézve taszító elektromos tér elér egy kritikus értéket, akkor a következő ion már nem fog a kapilláris falába ütközni, hanem eltérül a kapilláris tengelyének irányába.

A terelési jelenség fontos tulajdonsága, hogy az eltérített ionok még akkor sem kerülnek közel a kapilláris falához, ha a kapilláris tengelye néhány fokkal dől a bejövő ionnyaláb irányához képest. A töltött folt tere olyan erős, hogy amikor az ion a lehető legközelebb kerül a felülethez, a távolság köztük még akkor is sokkal nagyobb, mint a töltéscseréhez szükséges kritikus (5-10 Å) távolság a fal és az ion közt. Ezt a kritikus távolságot Burgdörfer és munkatársai határozták meg [126] az általuk kifejlesztett over-the-barrier modell segítségével. A kritikus távolságon kívül a töltéscsere tiltott folyamat, ezért az ionok megőrzik eredeti töltésállapotukat, ahogyan azt a kísérleti eredmények is mutatják.

Monte-Carlo szimulációk [63, 64] egyértelműen megmutatták, hogy a legtöbb töltés a bejárat közelében kialakuló töltésfoltban rakódik le. Valójában



**2.3.1 ábra:** A kapillárisok ionterelésének kialakulása. Az ábra (a) része a dinamikus szakaszt mutatja, amikor az ionok átvitele másodlagos töltésfoltok kialakulásával megy végbe. Az ábra (b) részén az egyensúlyi állapot beállta utáni szakaszra jellemző töltéseloszlás látható. Ekkor a bejárati töltésfolt szabja meg az ionátvitelt, a másodlagos töltésfoltok szerepe lecsökken.

ez a bejárati folt túl is töltődhet. A kialakuló elektromos tér olyan nagy lesz, hogy az ionokat nem a kapilláris tengelyének irányába, hanem azon is túl téríti. Ha ez bekövetkezik, akkor az ionok egy része a kapilláris szemközti falába csapódik. Így átmenetileg egy második, gyengébben töltött folt alakulhat ki a kapilláris belsejében. Ha ez a második folt töltődik túl, akkor egy harmadik töltött folt keletkezhet, és így tovább. Ezek az ideiglenes foltok a terelés létrejöttének dinamikai fázisában játszhatnak lényeges szerepet (2.3.1 ábra). A töltött foltok kialakulásának dinamikája vezérli az ionok terelésének dinamikáját is.

Az idő múlásával az önszerveződő töltéslerakódás és vesztés gyengíti a bejárati foltot, így a kapilláris ellenkező falába csapódó ionok száma csökken. Így a terelési folyamat elér egy aszimptotikus, egyensúlyi állapotot. Ebben az állapotban a másodlagos töltött foltok elveszítik jelentőségüket és az ionok átvitele stabilizálódik. A kapilláris belsejében egy kisebb töltött folt maradhat, ami a kapilláris tengelyének mentén irányítja az ionokat. Ezért az ionok túlnyomó része a kapilláris tengelye mentén lép ki, ahogyan azt a kísérletekben is megfigyelhetjük [122].

Tekintsük át az eltérítés szögét meghatározó alapvető mennyiségeket. Eleinte, mikor a bejárati töltésfolt kialakulása kezdődik, a kapillárisban kialakuló elektromos mező nagyon gyenge, így az ionok pályája gyakorlatilag egyenes. Ekkor a töltésfolt hossza  $z_{\Psi}$ .

$$z_{\Psi} = \frac{d}{\tan \Psi} \tag{2.3.1}$$

ahol d a kapilláris átmérője.

A töltéslerakódás növekedésével a térerősség y irányú  $E_y(\mathbf{r})$  komponense jelentőssé válik, ahol  $\mathbf{r}$ =(x,y,z) az ionpálya aktuális pontja. Ha

$$U_e = \int E_y(\mathbf{r}(z)) dz \qquad (2.3.2)$$

az elektromos mező  $E_y$  komponensének az integrálja a beeső ion pályájának mentén, akkor a dt = dz/v közelítéssel az ion eltérülési szöge  $\theta$  [30,72]:

$$\sin\theta = \frac{qU_e}{2T_p} \tag{2.3.3}$$

Itt q a lövedék töltése,  $T_p$  pedig a kinetikus energiája.

Gyakorlatilag a (2.3.3) egyenlet akkor ad lényeges információt, ha az  $E_y$  térkomponens állandónak tekinthető az x-y síkban. Ekkor  $E_y(\mathbf{r}(z)) = E_y(z)$ , és így a pályaintegrál a "z" koordináta szerinti egyszerű integrálássá egyszerűsödik. Megjegyzendő, hogy az  $U_e$  mennyiség potenciál dimenziójú.

A legegyszerűbb közelítésben feltételezzük, hogy az E<sub>y</sub> komponens változása a bejárati töltésfolt mentén z irányban meglehetősen kicsi. Ebben az esetben az effektív "potenciált" úgy írhatjuk:

$$U_e \approx \vec{E}_v l_p \tag{2.3.4}$$

ahol  $\vec{E}_y$  a bejárati töltésfolt l<sub>p</sub> hossza fölött átlagolt térkomponens. Ezért a 2.3.3es egyenletet átírhatjuk:

$$\sin\theta = \frac{q\vec{E}_y l_p}{2T_p} \tag{2.3.5}$$

A (2.3.5) formula a legegyszerűbb, "homogén bemeneti töltésfolt" közelítést reprezentálja. A terelés ebben a közelítésben akkor effektív, amikor az eltérítés szöge megegyezik a dőlésszöggel, azaz  $\theta = \Psi$ . Ebben az esetben az optimális terelő mező a 2.3.5-ös egyenletből határozható meg.

A 2.2.1 ábrán az átviteli profilok intenzitása a kétszeresen differenciális ion hozamnak  $dY(\theta, \phi)/d\Omega$  felel meg, ahol  $\theta$  és  $\phi$  a bejövő nyalábhoz képesti horizontális és vertikális szögeltérés. Ebben az ábrában  $\theta$  a megfigyelési szög, míg  $\phi = 0$  ebben a kísérletben rögzített volt, azaz a mintára merőlegesen esett a nyaláb. A kísérletileg meghatározott átviteli profilokat Gauss-szerű függvénnyel illeszthetjük [122]:

$$\frac{dY(\theta,\phi)}{d\Omega} = Y_0 \exp\left(-\frac{\sin^2\alpha}{\sin^2\alpha_t}\right),$$
(2.3.6)

ahol az  $Y_0 = dY/d\Omega \alpha = 0^{\circ}$ -nál mért hozam és az átviteli profil  $\alpha_t$  szélessége illesztett paraméterként kezelhet

ő. Ahogy a 2.2.1 ábra is mutatja, a kísérletileg mért átviteli profilok mind jól illeszthetők Gauss függvényekkel. Az ionok kilépési szögét ( $\alpha = \psi - \theta$ ) a kapilláris tengelyéhez viszonyítva mérték, míg a dőlésszög  $\Psi$  a bejövő nyalábhoz képest volt definiálva. Az átviteli profilok  $\sigma_t$  félértékszélessége (FWHM) az alábbi egyenletből határozható meg [122]:

$$\sin \sigma_t = 2\sqrt{\ln 2} \sin \alpha_t \tag{2.3.7}$$

Az átvitt ionok  $Y(\psi)$  teljes hozama a  $dY(\theta, \phi)/d\Omega$  a  $\theta$  és  $\phi$  szerinti integrálásával kapható meg. Gauss függvények esetén ez analitikus eredményt ad:

$$Y(\psi) = \frac{\pi}{4\ln 2} Y_0 \sigma_t \sigma_\phi \tag{2.3.8}$$

ahol a  $\sigma_{\phi}$  a félértékszélesség  $\phi$  irányban. Az átviteli hatásfok  $f(\psi) = Y(\psi)/Y_{in}$  pedig a bejövő és az átvitt ionintenzitások hányadosa.

A 2.3.8-as egyenlet azt mutatja, hogy a teljes hozam  $Y(\psi)$  arányos a profil maximumával  $Y_0$ , ha  $\sigma_{\theta}$  és  $\sigma_{\phi}$  szélességek nem változnak. Ezért a 2.2.1-es ábrán a profil maximumok értékei az átvitel dőlésszögtől való függését adják. Ezek szinte tökéletesen illeszthetők egy újabb Gauss függvénnyel. Így az átvitel szögfüggését felírhatjuk az egyszerű [127, 128]:

$$f(\psi) = f_0 \exp\left(-\frac{\sin^2 \psi}{\sin^2 \psi_c}\right)$$
(2.3.9)

alakban, ahol  $f_0 \leq 1$  a  $\psi = 0^\circ$  dőlésszögnél átvitt ionhányad. A későbbi mérések azt mutatták, hogy a formula igen széles körben alkalmazható, a kapilláris-minta anyagától, geometriai adataitól, sőt az ionok töltésétől és energiájától függetlenül. Ezért a benne szereplő karakterisztikus  $\psi_c$  mennyiséget fontos kísérleti paraméternek tekintjük és **a terelőképesség szögének** nevezünk. Azt mutatja, hogy milyen dőlésszögnél esik az átvitt intenzitás *e*-ed részére a nulla fokban pozícionált minta átviteléhez képest.

## 2.4 Kísérleti módszerek

#### 2.4.1 Kapilláris minták előállítása

A különböző laboratóriumokban a kapillárisminta-készítés sokféle változatát alkalmazták. Egyenes kapillárisokat gyakran nagyenergiás ionok által polimer membránban hagyott nyomok maratásával állítanak elő. Az első iontereléses tanulmányokban [11] polietilén-tereftalátot (PET) használtak. A fólia vastagsága 10 μm volt, amit előzőleg 100 MeV-es Xe ionokkal sugároztak be a dubnai Flerov Intézetben. A besugárzás után a fóliát 6N NaOH oldatban maratták, amivel minden ionnyomot hengeres kapillárissá alakítottak. A maratás időtartamával szabályozták a kapillárisok átmérőjét az 50-300 nm tartományban. Kiegészítő mérések azt mutatták [129], hogy a kapillárisok tengelyének egy relatívan nagy, FWHM 1,5° szögszórása volt. Ezt a szögszórást az ionnyomok létrehozására használt Xe ionok Rutherford-szóródása okozta.

A kísérletek szempontjából előnyösebb volt olyan kapillárisokat használni, amelyek tengelyei sokkal kisebb szögszórásúak, jó közelítéssel párhuzamosak. 2005 után a PET fóliában kialakított kapillárisok párhuzamosságán úgy sikerült javítani, hogy a nyomokat létrehozó ionok energiáját jelentősen megnövelték [129, 130]. A Flerov Intézetben a kapillárisokat jobb, mint 0,2° FWHM szögszórással tudták készíteni úgy, hogy lövedékként 250 MeV-es Kr ionokat használtak. A 2.4.1.1 ábra egy pásztázó elektronmikroszkóp (SEM) által készített képeken mutatja a kapillárisok bejáratát és azok területi eloszlását. A bal oldali képen a kapillárisokat 1×10<sup>8</sup> ion/cm<sup>2</sup> részecskeárammal, míg a jobb oldali képen



**2.4.1.1 ábra**: PET fóliában kialakított kapillárisok elektronmikroszkópos felvételei. A bal oldalon a kapillárisok sűrűsége 10<sup>8</sup> cm<sup>-2</sup> a kapillárisok átmérője 200 nm. Ezt nagy sűrű-ségű mintának tekintjük. Az ábra jobb oldalán a kapillárisok sűrűsége 5,1×10<sup>6</sup> cm<sup>-2</sup>, a kapillárisok átmérője 170 nm, ez egy kis sűrűségű minta felvétele [131].



**2.4.1.2 ábra:** A bal oldalon SiO<sub>2</sub> kapillárisok felülnézeti képe. A kapillárisok átmérője 200 nm, az oxid réteg 100 nm vastagságú [132]. A jobb oldalon alumíniumból elektrokémiai oxidációval előállított Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kapillárisok elektronmikroszkópos felvétele [28].

Az ionnyaláb véletlenszerű természete miatt a kapilláris bejáratok statisztikusan oszlanak el a minta egész felületén. A nagyobb kapilláris sűrűségű mintán előfordulnak átfedő kapilláris bejáratok, míg az alacsonyabb sűrűségű minta esetében ilyet nem látunk.

Más eljárást használtak ahhoz, hogy SiO<sub>2</sub>-ben alakítsanak ki kapillárisokat (2.4.1.2 ábra) [132]. Ezeket derékszögű elrendezésben, elektrokémiailag maratták N-típusú szilíciumba (fajlagos ellenállás ~1 $\Omega$  cm). A kezdeti mintázat létrehozásához a szilícium felületen éles kontúrú gödröcskéket alakítanak ki, amit aztán KOH-val maratnak tovább. Ezután a kapillárisok belső felületén oxidálással hoznak létre egy 100 nm vastagságú SiO<sub>2</sub> réteget. Így a kapillárisok belső felületet teit nagyon jó szigetelő anyag borítja, amely lehetővé teszi az ionok terelődését.

A SiO<sub>2</sub> kapillárisok párhuzamossága összemérhető a PET kapillárisokéval. A SiO<sub>2</sub> kapillárisok egyedi tulajdonsága a vékony (100 nm) oxid réteg, ez különíti el a kapilláris falát a vezető szilíciumtól, ami viszont földpotenciálon van. Következésképpen a belső kapilláris falra lerakott töltések elvándorlása a tömbi anyagba relatíve nagy lehet.

A 2.4.1.2 ábrán olyan kapilláris kötegekre is láthatunk példát, amelynek anyaga Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (alumina). A nanopórusos alumínium oxidot elektrokémiai oxidációval állították elő alumínium lemezből [36, 37, 133, 134, 135]. Egy önrendező folyamat révén az oxid szorosan illeszkedő nanokapillárisokat hoz létre hexagonális szerkezetben. A nanokapillárisok geometriai paraméterei könnyedén beállíthatók, ami a lehetséges alkalmazások szempontjából is nagyon előnyös. Az ábrán látható kapillárisok átmérője 280 nm, a hosszuk 15 µm, míg a pórusok közötti távolság ~450 nm. A minta elő- és hátlapjára aranyréteget párologtatnak, vagy porlasztanak, hogy elkerüljék a minta felületeinek makroszkopikus feltöltését. Saját mintáinknál a porlasztást négy irányból, 30°-os szögben végeztük, így alakítva ki egy ~20 nm vastagságú réteget.

A kapilláris kötegek egyik fontos tulajdonsága a párhuzamosságuk mértéke. A kapilláris-tengelyek szögszórásának meghatározására nagyenergiájú ionok átvitelét használják, ezeknél a dőlésszögtől függő terelési effektus elhanyagolható [133]. Ez a mérési eljárás általában egy Gauss-szerű görbét eredményez, amelynek a szélessége arányos a kapilláris tengelyek szögszórásával.

Az itt felsorolt mintákon kívül más típusú kapillárisokat is vizsgáltak. Kereskedelmi forgalomban elérhető PC kapillárisokat vizsgáltak az Atomkiban, Debrecenben [46, 107]. Darmstadtban a GSI Helmholzzentrumban számos nagy párhuzamosságú mintát állítottak elő PET és polikarbonát (PC) anyagban. Ehhez 2,2 GeV-es arany ionokat használtak [30, 32]. Ezeket a mintákat biztosították további laboroknak is, ahol szintén a terelési jelenséget vizsgálták. Továbbá derékszögű négyszög alakú és rombikus kapillárisokat is előállított a GSI csoport muszkovit csillámlemezben [47, 48].

#### 2.4.2 Mérési elrendezések

Az iontereléses kísérletekben az ionforrás és az ionnyaláb-vezető rendszer egy olyan kísérleti kamrához csatlakozik, amelyben a kapilláris-minta goniométerre van felszerelve, és a detektor-rendszer is elforgatható az ütközési zóna körül. Az átvitt ionok detektálására gyakran elektrosztatikus analizátorokat használnak, amelyek az ion energiájának és töltésállapotának hányadosát mérik.

A 2.4.2.1 ábrán az a mérőkamra látható, amelyben az első ionterelési kísérleteket végezték [11]. Az elrendezés tipikusnak tekinthető. Ezt a berlini HMI intézet Ionenstrahl Laboratory-jában állították össze egy 14,5 GHz-es Elektron Ciklotronrezonanciás (ECR) ionforrás nyalábján használt ultranagy-vákuum kamrában, amelyben a háttérnyomás 10<sup>-10</sup> mbar volt [128]. A céltárgy-fóliákat egy kör alakú keretre feszítették ki, amit egy nagy precizitású goniométerre szereltek fel. Ez lehetővé tette, hogy a céltárgy-fóliát a nyalábirányhoz képest megdöntsék, illetve két irányban mozgassák. A 0,01-1 nA között változó áramerősségű ionnyaláb 1,2 mm átmérőre volt kollimálva.



2.4.2.1 ábra: A nano-kapillárisok ionterelésének vizsgálatára használt tipikus mérési elrendezés sematikus vázlata [122]. A balról belépő lassú, nagytöltésű ionnyalábot a lencserendszer fókuszálja és a goniométerre felszerelt céltárgyra irányítja. Az átvitt ionokat elektrosztatikus analizátorral elemzik. A spektrométer a kamra tengelye mentén körbe forgatható. Ha a spektrométer hátlapján nyílás van, akkor egy másik detektorral a semlegesítődött részecskék is detektálhatók.

A nyaláb széttartása ±0,25° volt. Az ionokat elektrosztatikus analizátor segítségével mérték. A spektrométer a kamra középpontjában rögzített céltárgy körül forgatható volt.

Ha elektrosztatikus analizátort használunk, akkor a részecskék emissziós szögét csak egy dimenzióban tudjuk mérni. Több kísérleteket végeztek úgy is, hogy kétdimenziós helyzet-érzékeny detektort (PSD) használtak, ami a kisugárzás szögét két dimenzióban méri [38, 42]. Ilyen berendezéssel végeztük saját méréseinket is. Ugyanakkor kétdimenziós detektálásnál nincs pontos információ a részecske energiájáról. A terelt lassú ionok eredeti energiájukat megőrzik, így nem szükséges energia szerinti analizálást végezni. Ugyanakkor hasznos az ionok töltésállapotát megállapítani, ami a detektálás előtti elektrosztatikus eltérítéssel megoldható.

#### 2.5 Kísérleti eredmények

#### 2.5.1 Töltésállapot eloszlás meghatározása

A 2.2.2 ábra töltésállapot eloszlása rögzített megfigyelési szögeknél lett felvéve. Valójában az átvitel nagyságát az is befolyásolja, hogy az átviteli profil szélessége változik a töltésállapottal [127]. A 2.5.1.1 ábra mutatja a q<sub>f</sub> =1-6 közötti végső töltésállapotokhoz tartozó csúcsok szélességét nulla fokos dőlésszögnél. Látható, hogy a szögeloszlás szélessége növekszik a q<sub>f</sub> végső töltésállapottal. Ez azt sugallja, hogy a töltéscsere a kapilláris kijárata előtt történik, az ottani fókuszáló/defókuszáló tér a kimenő töltésállapottal arányosan szélesíti a nyalábot.

Hasonló eloszlások adódtak 7 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionokkal bombázott SiO<sub>2</sub> céltárgy esetén is [33]. Kanai és munkatársai [26] szintén elvégezték a PET kapillárisokat besugárzó 3 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionok töltésállapot analízisét úgy, hogy kétdimenziós helyzetérzékeny detektort (PSD) használtak. A PSD előtt egy elektrosztatikus eltérítő lemezpárt helyeztek el, ami az átvitt ionok töltésállapotait szétválogatta. Az átvitt ionok profilját és pozícióját a PET minta felületére érkező, integrált Q<sub>d</sub> töltés függvényében mérték. A Q<sub>d</sub> töltés alkalmas mennyiség arra, hogy az átvitt ionok intenzitásának időbeli fejlődését vizsgáljuk. A 2.5.1.2 ábrán nyilak jelzik a semlegesítődött Ne<sup>0</sup> atomok és Ne<sup>7+</sup> ionok várt helyzetét. A besugárzás kezdetén, egy gyenge semleges Ne<sup>0</sup> csúcs figyelhető meg az ábra "A" részén, míg a Ne<sup>7+</sup> csúcs gyorsan növekszik a Q<sub>d</sub> töltés növekedésével. Az egyensúlyi állapot elérése után a 0-7+ töltésállapot közötti kevés ion is megfigyelhető, habár ezek nem elkülöníthetők, mert a detektor feloldása nem elég jó.

Juhász és munkatársai [125] 3 keV-es Ar<sup>7+</sup> ionokkal bombáztak PET céltárgyat. Az egyensúlyi állapot beállta utáni állapotot mutatja a 2.5.1.3 ábra.



**2.5.1.1 ábra:** A Ne<sup>q+</sup> ionok szögeloszlása a q=6-os töltésállapotig. A görbéket csúcsban összenormálták, hogy a hasonlóságok és különbségek jobban látszódjanak. A vizsgálat Ψ=0° dőlésszögnél történt. A folytonos vonalak Gauss-illesztéseket szemléltetnek [127].



**2.5.1.2 ábra:** Az átvitt Ne<sup>q+</sup> ionok időfejlődésének kétdimenziós képe különböző integrált  $Q_d$  töltéseknél. A besugárzó ionnyaláb 3 keV Ne<sup>7+</sup> volt. Az ábra (A) részén  $Q_d$ =0-5 nC, (B) részén  $Q_d$ = 20-25 nC, (C) részén pedig  $Q_d$ =80-85 nC lerakódott töltés utáni állapotot látjuk [26].



**2.5.1.3 ábra:** Micro-Channel Plate (MCP) detektorral mért kétdimenziós ionátviteli profil PET kapillárisoknál. A különböző töltésállapotokat horizontális elektrosztatikus térrel választották szét. A semleges részecskék foltjából megállapítható, hogy a kapillárisok dőlésszöge  $\Psi$ =5,5°. Az ionok ettől jobbra tolódnak el a szeparáló tér hatására [125].

Esetükben is az eredeti Ar<sup>7+</sup> töltésállapot volt a domináns. A semlegesítődött atomok hányada néhány százaléknyi járulékot adott. Hasonlóan a 2.5.1.2-es ábrán látottakhoz, az egyéb töltésállapotok itt is olyan elenyészőek voltak, hogy nem lehetett megfigyelni azokat.

#### 2.5.2 A kapillárisok töltődésének és kisülésének vizsgálata

Ahhoz, hogy az ionátvitel időbeli fejlődését tanulmányozzuk, a jellemző mennyiségeket az idő függvényeként kell kezelnünk. Az idő helyett többnyire a kapilláris felületére érkező integrált töltést

$$Q_{\rm d} = I_p t \tag{2.5.2.1}$$

tekintik független változónak, ahol az I<sub>p</sub> a lövedék-nyaláb árama. Ebben az esetben az eredmények lényegében függetlenek a beérkező ionáram fluktuációitól. Természetesen ez csak közelítőleg igaz, de ha a nyalábáram ingadozása nem drasztikus, ez a közelítés jónak mondható.



**2.5.2.1 ábra:** Az átvitt, 3 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionok intenzitásának időbeli alakulása. A kapillárisok feltöltődése és kisülése is látható, a PET minta három különböző dőlésszögénél ( $\Psi$ =5°,  $\Psi$ =1°,  $\Psi$ =15°) végzett kísérletekben. A 10 perces feltöltődési szakasz után a nyalábot kikapcsolták, majd. időnként rövid nyalábimpulzusokkal tesztelték az átvitel csökkenését. A vonalak modell-számítások eredményei [128].

Hogy a különböző átmérőjű kapillárisokra kapott eredményeket összehasonlíthassuk, kedvezőbb, ha az egy kapillárisba beérkező integrált töltést használjuk:

$$Q_{\rm in} = Q_d \left(\frac{d}{D}\right)^2 \tag{2.5.2.2}$$

ahol a *d* és *D* a kapilláris és a nyaláb átmérője. A töltött folt kialakulásának kezdetén az ionok behatolnak a kapilláris felületébe, ahol teljesen lefékeződnek. Egy sokkal kisebb töredékük kiszóródhat a felületből és semleges atomként elhagyhatja a kapillárist. A bejárati töltésfolt növekedésével elkezdődik az ionok átvitele. Ha a kapillárisok párhuzamosak a bejövő nyalábbal, akkor az ionátvitel azonnal elkezdődik a besugárzással.

A kapillárisok töltődéséről és kisüléséről úgy szerezhetünk információt, ha az ionok f(t) átvitt hányadának (az átviteli hatásfoknak) időbeli fejlődését tanulmányozzuk. A 2.5.2.1-es ábra a 3 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionok átvitt hányadát mutatja egy PET minta különböző dőlésszögeinél [128].

Az első 10 percben az átvitel növekszik, elér egy konstans (egyensúlyi) értéket. Az adatokat egy késleltetve induló exponenciális felfutás görbéjével illesztették.

$$f(t) = f_{\infty} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t - \tau_s}{\tau_c}\right) \right] ha \ t > \tau_s,$$
  
$$f(t) = 0, \qquad ha \ t \le \tau_s .$$
 (2.5.2.3)

Itt  $f_{\infty}$  az egyensúlyi helyzetben elért átvitel,  $\tau_s$  egy küszöbérték, és  $\tau_c$  a kapilláris feltöltődésére jellemző időállandó, mely a dőlésszöggel növekszik.

A 10 perces feltöltési szakasz után a nyalábot kikapcsolták azért, hogy megmérjék a kapillárisok átvitelének a töltések kisülése miatti csökkenését. Ezt úgy végezték el, hogy az átvitelt rövid nyalábimpulzusokkal vizsgálták, amiknek hozzájárulása a kapilláris töltéséhez elhanyagolható volt. Látható, hogy mindhárom letöltődési görbe eltér az exponenciális függvénytől (amely fél-logaritmikus ábrázolásban egy egyenes vonal lenne). Azt tapasztalták, hogy a kapillárisban megmaradó töltés miatt még napok multán is volt egy nagyon kicsi, de észlelhető átvitel. Ez annak a jele, hogy a kisülési folyamatot egy nemlineáris vezetési törvény vezérli, ami nagyon fontos szerepet játszik a terelési mechanizmusok modellezésében.

Az ábrából látható, hogy a kisülés sebessége növekszik a növekvő dőlésszöggel, ami egy másik jele annak, hogy a töltések eltávolításának törvénye nemlineáris. A kísérleti eredményeket jól reprodukálták a folytonos vonallal jelzett modellszámítások [128]. Ezekben a számításokban a töltéseltávolítás exponenciálisan növekedett a lerakott töltések által keltett elektromos mezővel.

#### 2.5.3 Átviteli profilok

Az átviteli profil reprezentálja a kapillárison átvitt, és az abból kilépő ionok szögeloszlását. Az iontereléses kísérletek egyik fő módszere, hogy ilyen átviteli profilokat veszünk fel. Ezek legfontosabb paraméterei a terelési szög,  $\Psi_c$  (ld. (2.3.9)), illetve a profil-szélesség  $\sigma_t$  (ld. (2.3.7)).

A 2.2.1 ábrán egy igen jó terelőképességű PET kapilláris-minta adatai láthatók. Ezekhez a  $\Psi_c$ =9° terelési szög tartozik. Az átviteli profilok is szélesek:  $\sigma_t$ =6°.

A 2.5.3.1 "a" ábra egy másik szélső helyzetet mutat be, a SiO<sub>2</sub>-ben [33] kialakított kapillárisok esetében megfigyelt átviteli profilokat. A lövedék itt is Ne<sup>7+</sup>volt, de nagyobb, 7 keV energiával. A terelési szög  $\Psi c$ =2,8° relatíve kicsi, és az átviteli profil  $\sigma_t$ =1,2° FWHM szélessége sem nagy. Ez részben a nagyobb lövedékenergiának köszönhető.



2.5.3.1 ábra: 7 keV energiájú Ne<sup>7+</sup> ionok átviteli profiljai az ábrákon jelzett dőlésszögeknél. Az ábra felső részén a kapillárisok anyaga SiO<sub>2</sub>
[33], az alsó részen pedig Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [37].

A 2.5.3.1 "b" ábrán ugyanolyan lövedékkel bombázott, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ban kialakított kapillárisok átviteli profiljai láthatók [37]. Ennek a mintának a terelőképessége rosszabb ( $\Psi_c$ =1,2°). Az Atomkiban, ugyancsak Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mintán elvégzett mérésekből származó átviteli profilokat mutatja a 2.5.3.2 ábra [42]. Ebből a kísérletből  $\Psi$ =4,5°-os terelési szöget származtattak, ami sokkal magasabb, mint az előbbi  $\Psi$ =1,2°.

A terelőképesség és a profilszélesség növekvő energiával csökken. Jól látható ez a 2.5.3.3 ábrán, amely egyetlen mintán végzett mérések eredményeit mutatja a bombázó energia függvényében.



2.5.3.2 ábra: Az Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kapillárisokból kilépő 3 keV-es Ne<sup>6+</sup> ionok átviteli profiljai. A kapillárisok dőlésszöge az ábrán látható. A kapillárisok átmérője 260 nm [42].



2.5.3.3 ábra Ne<sup>7+</sup> átviteli profilok paramétereinek lövedékenergiafüggése PET minta esetén. A felső sor mutatja a profilok félértékszélességét, az alsó sor pedig а dőlésszög függvényében átvitt  $f(\Psi)$  ionhányadot. A felső sor szaggatott vonalai csak a szemet vezetik. Az alsó sor folytonos vonalai Gauss-illesztések eredményei [21].

**2.5.3.4 ábra:** A 7 keV-es Ne<sup>7+</sup>, a 13 keV-es Ar<sup>13+</sup> és a 25 keV-es Xe<sup>25+</sup> ionok átviteli profiljai a  $\Psi$ =0°, 5° és 8° dőlésszögnél. A lövedékek konstans energia per töltés arányainál az átviteli profilok jól megfigyelhető hasonlóságai láthatók. [21]

15

Egy elemzés szerint a profil szélesség közel arányos a terelési szöggel, mivel mindkettőt a kapilláris belsejében felhalmozódó töltések határozzák meg [42]. Az adatok azonban mindkét mennyiségnél nagy szórást mutatnak. A különböző laboratóriumokból, ugyanazon anyagú mintán végzett kísérletek eredményei erősen eltérhetnek egymástól [122].

A 2.5.3.4 ábra további példákat mutat az átviteli profilokra. Az adatokat 7 keV Ne<sup>7+</sup>, 13 keV Ar<sup>13+</sup>, illetve 25 keV Xe<sup>25+</sup> lövedékekkel vették fel úgy, hogy az energia/töltés arány állandó legyen. Az eredmények gyakorlatilag megegyeznek az átviteli profilok intenzitását és szélességét tekintve. Ez a felismerés azt jelzi,

hogy a leglényegesebb paraméter, ami az átviteli profilokat vezérli, a lövedék töltés per energia aránya. Ez arra utal, hogy a terelési tulajdonságok függetlenek a lövedék tömegétől, ami az elektrosztatikus mezők tipikus tulajdonsága [122].

#### 2.5.4 Az ionátvitel áramfüggése

A teljes ionhozam időbeli fejlődését tanulmányozták Stolterfoht és munkatársai [19]. A hozamot az átviteli profilok (2.3.2)-as egyenlet szerinti integrálásával határozták meg. A 2.5.4.1-es ábra az átvitt 3 keV energiájú Ne<sup>7+</sup> ionok teljes Y hozamát mutatja.

A felfutási görbék a 2.5.4.1-es ábra (a) illetve (b) részén láthatók 0,1 nA és 1 nA teljes ionáram mellett. Az  $f = Y/Y_{in}$  átviteli hatásfokot (átvitt ionhányadot) a  $Q_d = I_p t$  beérkezett töltés függvényében a 2.5.4.1-es ábra (c) és (d) részei mutatják. Látható, hogy míg az abszolút hozam időbeli fejlődése erősen függ a bemenő áramtól, az átviteli hatásfok az áramtól gyakorlatilag független, konstans



RIKEN: 3.5 keV, 2.8° Tilt

0.1 Incident Ne7+ Current (nA)

3.0 keV, 5.0° Tilt

Calculations

HMI:

2.5.4.1 ábra: Az ábra bal oldalán a 3 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionok teljes hozamát Y, a jobb oldalon pedig az átvitt ionhányadot láthatjuk a Ψ=5° dőlésszögnél. A besugárzó nyalábáram I<sub>P</sub>=0,1 és 1 nA volt, ahogyan az ábrán is látható. A felfutási idő τ<sub>c</sub> és a hozzátartozó töltés  $Q_c = \tau_c I_p$ , a görbéken paraméterként szerepel [19].

2.5.4.2 ábra: Az egyensúlyi állapot beállta utáni ionátvitel, f∞, mint a Ne<sup>7+</sup> besugárzó áram függvénye. A nyitott négyszöggel jelzett adatokat a RIKEN intézetben mérték, a telekörrel jelzett adatokat pedig a HMI-ben. A vonalak pedig a nemlineáris modell felhasználásával számított eredményeket mutatják [19].

ŀf 0.

0.01

0.0

értékhez tart. A 2.5.4.1-es ábra (c) és (d) részében a kísérleti adatokat a (2.5.2.3)as egyenletből származtatott normalizált kifejezéssel illesztették:

$$Y(Q_d) = Y_0 \left[ 1 - \exp\left(-\frac{Q_d - Q_s}{Q_c}\right) \right]$$
(2.5.4.1)

ha  $Q_d > Q_s$ , egyébként pedig  $Y(Q_d) = 0$ . A  $Q_s$  töltés itt egy küszöbértéket jelent, míg  $Q_c$  egy karakterisztikus állandó, amelyet szabad paraméterként kezeltek. A  $Q_c$ -re kapott eredményeket a 2.5.4.1-es ábra jobb oldalában feltüntették.

A 2.5.4.2-es ábrán az  $f_{\infty}$  egyensúlyi átvitel látható a bejövő ionáram  $I_p$  függvényében, két, egymáshoz nagyon hasonló, a HMI-ben készült mintára, két független méréssorozat esetén [19]. Az adatokat különböző dőlésszögnél és ionenergiánál vették fel, ahogyan az az ábrán jelezve is van. Ezen különbségek ellenére a két laboratóriumból származó eredmények azt mutatják, hogy az egyensúlyi helyzetben átvitt ionhányad  $f_{\infty}$  gyakorlatilag konstansnak tekinthető az ionáram nagyságrendeket átfogó változásától függetlenül. Az áramtól való ilyen gyenge függésnek nagyon fontos következményei vannak a terelési jelenség modellezésében.

#### 2.5.5. Nemlineáris töltés-áram kapcsolat

Az a tény, hogy az aszimptotikus hányad,  $f_{\infty}$  nagyjából állandó, maga után vonja, hogy a bejárati foltban lévő töltés, ami az ionok eltérítéséért felelős, nem nagyon változik az ionárammal. Az egyensúlyi töltést, ami a bejárati foltjában lerakódik durván megbecsülhető a

$$Q_{\infty} \approx n_c (Q_s + Q_c) \tag{2.5.5.1}$$

feltételezés alapján [122]. Itt  $n_c = (d/D)^2$ , a fólia felületére lerakódott töltést az egy kapillárisban lerakódott töltéssé konvertálja (lásd a (2.5.2.2)-es egyenletet). Hogy a töltés ebben a foltban állandó maradjon, a bejövő áramnak  $J_{in} = J_d + J_p$  két részre kell esnie, egy  $J_d$  kisütő és egy  $J_p$  átvitt (a kapilláris kijárata felé haladó) áramra. Az áthaladó áram  $J_p \approx f_\infty J_{in}$  az átvitt ionhányadból határozható meg. Így a kisütő áram megbecsülhető a  $J_d = rJ_{in}$  összefüggés alapján, ahol  $r = 1 - f_\infty$ . Egyensúlyi helyzetben tehát, a bejövő áram értékétől függetlenül, a töltésnek ugyanolyan százaléka folyik el a földelt fémfelület irányába.



**2.5.5.1 ábra:** A kisütő áram  $(J_d = rJ_{in})$  a kapilláris bejáratának közelében lerakott  $Q_{\infty}$  függvényében. A pontokat kísérleti adatok alapján becsülték. A vonalak a (2.5.5.2) egyenlet alapján származtatták, míg a szaggatott vonal az erősen kinagyított lineáris áramfüggést mutatja [19].

Mivel a  $Q_{\infty}$  nem sokat változik a  $J_{in}$ -nel, a kisütő áramnak kell nagyon megnövekedni a befutó áram növekedésekor. Ez az erős növekedés látható a 2.5.5.1 ábrán, ahol a  $J_d = (1 - f_{\infty})J_{in}$  összefüggéssel a kísérleti eredményekből kapott kisütő-áram értékeket láthatjuk az egy kapillárisba beeső töltés függvényében.

A kisütő áram hirtelen növekedésének leírására Stolterfoht és munkatársai a Frenkel-Poole modellt [136] alkalmazták. Ez a modell a szigetelőkben nagy térerősségeknél, a letörést megelőző tartományban kialakuló vezetési mechanizmust írja le. Ha a térerősség nagy, lecsökkenti azokat a potenciálgátakat, amelyek magassága megszabja a töltéshordozók hő hatására történő átmenetét a vezetési sávba. Az átmenet erősségét (transition rate) az alábbi kvázi-exponenciális kifejezés adja meg:

$$\Gamma_h = \Gamma_0 \exp\left(\sqrt{\frac{E}{E_c}}\right), \ ahol \ E_c = \frac{\varepsilon (kT)^2}{e^3}$$
 (2.5.5.2)

ahol  $\Gamma_0$  a térmentes esetet ( $E \rightarrow 0$ ) jellemző átmenet-erősség,  $E_c$  pedig a hőmérséklettől függő kritikus térerősség, szobahőmérsékleten 1.33 V/m [122]. Ez a modell a kisütő áramra [127] az alábbi formulát adja:

$$J_{\rm d}(Q) = \frac{Q}{\tau_d} \exp\left(\sqrt{\frac{Q}{Q_d}}\right)$$
(2.5.5.3)
ahol  $Q_d$  és  $\tau_d$  karakterisztikus töltés és időállandó értékek, melyeket többnyire szabad paraméternek tekintenek. A 2.5.5.1-es ábrán folytonos vonal a (2.5.5.3) formula illesztésével kapott kisütőáramot mutatja mint a beérkező töltés függvényét. A kísérleti és az elméleti értékek közötti egyezés a fenti kvázi-exponenciális jellegű  $J_d$ -Q kapcsolat helyességét mutatja.

Az átviteli hatásfok befutó áramtól való függetlensége határozottan ellentmond a lineáris áramfüggésen alapuló számítások eredményeinek (a 2.5.5.1es ábrán szaggatott vonal jelöli), ami azt mutatja, hogy a lineáris modell alkalmatlan a kísérleti eredmények reprodukálására [19].

### 2.5.6 Az ionátvitel dinamikája

Az ionok terelődése a dőlt kapillárisokban a bejárati töltésfolt mellett általában további töltés foltok kialakulásán keresztül fejlődik (lásd a 2.3.1 ábrát). Hogy a töltésfoltok a kapilláris teljes hosszában kialakulhatnak, már Schiessl és munkatársai [63, 64, 68] feltételezték modellszámításaikban, és kimutatták, hogy a töltött foltok hatással lehetnek az átvitt ionok kibocsátási szögére. A kapilláris teljes hosszában kialakuló töltésfoltokat kísérleti úton Skog és munkatársai [38] tanulmányozták először (2.5.6.1 ábra), 7 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionok terelődésének mérésével SiO<sub>2</sub> mintában kialakított kapillárisokon keresztül. A kapillárisok hossz-átmérő aránya igen nagy, 250 volt.

Látható, hogy az átviteli profil középpontja a kapilláris tengelyétől 0,6°-kal eltérve indul, átmozog a középvonalon, míg el nem éri a kapilláris tengelyéhez képest -0,5°-os túllépést, ahonnan visszafordul, és a középvonalon megáll. A profil középpontjának mozgását azzal magyarázták, hogy a kapillárisban 3 töltött folt alakul ki, ahogyan az ábra jobb oldala mutatja. Ez a meggondolás gyümölcsözőnek bizonyult [26, 35, 48]. A 2.5.6.2-es ábra további példát mutat az átviteli profilok dinamikus fejlődéséről PET kapillárisok esetében [48]. Minden egyes átviteli profilt  $Q_d = 1$  nC befutó töltésre normalizáltak. Minden ábrán jelölve van a teljes  $Q_d$  töltés, amit addig a pillanatig gyűjtöttek, mikor a profil felvételre került.

A többszörös csúcsok jelenléte a mért eloszlásokban a kapillárisban lévő töltött foltoknak tulajdonítható. Hasonló megfigyeléseket tettek Schiessl és munkatársai [64].



Observation Angle (deg)

Mean Angle (deg)

**2.5.6.1 ábra:** Az egy kapillárisba eső töltésmennyiség után felvett kétdimenziós képek, (a) 250 e után, (b) 420 e után, (c) 1290 e után és (d) 4360 e után. A szaggatott vonal jelzi a dőlésszöget ( $\Psi$ =-2°). Jobbra látható a töltésfoltok kialakulásának sematikus rajza a megfelelő minta ionpályával [38].

**2.5.6.2 ábra:** A 200 nm átmérőjű PET kapillárisokon átvitt 3 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionok átviteli profiljai és az átlagos kilépési szögei. A dőlésszög  $\Psi$ =5°. A bal oldali oszlopban a profilok a növekvő lerakott töltés (Q<sub>d</sub>) szerint láthatók. A profilokat három Gauss függvény összegével illesztették, ez adja a kísérleti pontokra illeszkedő folytonos vonalakat. A jobb oldali oszlop mutatja a kapcsolódó átlagos kilépési szöget. A bal oldali oszlop (a)-(e) jelölései megfelelnek a jobb oldali oszlop ugyanígy jelölt pontjainak [48].



**2.5.6.3 ábra:** A kapillárisok belsejében kialakuló töltésfolt elrendeződés időbeli fejlődése. A domináns folt a bejárat közelében keletkezik. A többi folt időlegesen van hatással az ionok átvitelére [25].

Az is látható, hogy az egyes csúcsok intenzitása jelentősen változik a töltéslerakódással. Ennek megfelelően a kibocsátási szög átlagértéke változik, ahogyan a 2.5.6.2-es ábra jobb oszlopa is mutatja. A kibocsátási szögoszcilláló mozgást ír le a középvonalhoz képest. A 2.5.6.3-as ábrán a foltkialakulásnak egy lehetséges lefolyása látható. Összességében három töltött folt keletkezik. Két ideiglenes folt intenzitása és helye megváltozik a besugárzó töltés növekedésével.

#### 2.5.7 Semleges részecskék kibocsátása

A semleges lövedékek a nagytöltésű ionok kapillárison történő áthaladása során, többszörös töltéscserével járó folyamatok eredményeként keletkeznek. A semleges részecskék szisztematikus vizsgálatát Juhász és munkatársai [125] végezték el, ahol ionok átvitelét vizsgálták PET nano-kapillárisokon Ar<sup>7+</sup> ionokkal. Azt találták, hogy a semleges részecskék hányada nagyobb volt, mint azon részecskék száma, melyek az eredetitől eltérő töltésállapotban léptek ki a kapillárisokból.

A 2.5.7.1-es ábra az ionok és a kilépő semleges részecskék átvitelének időbeli fejlődését mutatja, szokás szerint a Q<sub>d</sub> töltés függvényében. Az Ar<sup>7+</sup> ionok átvitele a  $Q_s = 13$  nC küszöbtöltésnél kezdődik, az intenzitás pedig  $Q_c = 118$  nC karakterisztikus töltésállandóval emelkedik (lásd (2.5.4.1)). A exponenciális emelkedésre ülő oszcillációk jól mutatják az előző alpontban leírt dinamikát.



**2.5.7.1 ábra:** A PET kapillárisokon átvitt 3 keV-es Ar<sup>7+</sup> lövedékek hozama az ionok (a) és a semlegesítődött részecskék (b) esetén a minta felületére lerakódott töltés függvényében. A kapillárisok dőlésszöge  $\Psi$ =5,5° volt [125].

A semlegesítődött részecskék átvitele kisebb késéssel  $Q_s = 4$  nC kezdődik, karakterisztikus töltésállandója  $Q_c = 33$  nC az ionokénál jelentősen kisebb. A semlegesítődött atomok kibocsátása megelőzi a terelt ionok átvitelét. A töltésbevitel kezdetekor a bejárati töltésfolt még gyenge, így az ionok még beléphetnek a kapilláris felületébe. Ebben az esetben valószínű, hogy a semleges részecskék a kapilláris bejáratának közelében keletkeznek. Az azonnal felbukkanó semleges atomok bizonyítékul szolgálnak a kapilláris bejáratának felülete és a beérkező ion között lejátszódó többszörös töltéscserére.

#### 2.5.8 A kapillárisok blokkolódása és a sűrűségi hatások

Azt, hogy az átvitel nem mindig stabilizálódik egy egyensúlyi értéknél, először polikarbonát mintákon tapasztalták [30]. A 2.5.8.1-es ábra a teljes ionhozamot mutatja, melyet 95 nm átmérőjű és 10 μm hosszúságú PC kapillárisokon mértek 3 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionokkal. Az ábra (a) részén a kis szögnél, -0,4°-nál mért hozam látható, amely kezdetben éles maximumot mutat, ezt az intenzitás nullára csökkenése követi, ahogy a töltésbevitel növekszik a kapillárisban. A 3° és 5°-nál mért hozamok a csökkenés előtt kezdeti emelkedést mutatnak.



**2.5.8.1 ábra:** A 10  $\mu$ m hosszúságú és 95 nm átmérőjű PC kapillárisokon átvitt Ne<sup>7+</sup> ionok teljes hozama az egy kapillárisba eső töltés függvényében. Ahogy az ábrán is látható, a kapillárisok dőlésszöge  $\Psi$ =-0,4°, 3° és 5° [30].

**2.5.8.2 ábra:** A PET és PC kapillárisokon átvitt Ne<sup>7+</sup> ionok teljes hozama az egy kapillárisba beeső töltés függvényében. A dőlésszögeket, a kapilláris átmérőket és hosszakat az ábrán jelölték [30].

Minden dőlésszögnél közös, hogy a hozamgörbék végül nullára esnek. Ez a blokkolódás annak tulajdonítható, hogy a kapillárison belül lerakódó töltések tere részlegesen vagy teljesen lefékezi az ionokat. Ezzel a jelenséggel saját kutatásaink ismertetésekor részletesebben is foglalkozom majd.

Részleges blokkolódást figyeltek meg 165 nm átmérőjű PC kapillárisok esetében is, melyeken 3 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionok haladtak keresztül, ahogy a 2.5.8.2-es ábra (b) része is mutatja [30]. A teljes, vagy részleges blokkolódás a PC kapillárisok esetében speciális jelenség, melyet más anyagok használatának esetében nem figyeltek meg. Korábbi, PET kapillárisokban történt iontereléses mérések az egyensúly elérése után konstans átvitelt mutattak [11, 25, 29]. Például a 2.5.8.2-es ábra (a) részén olyan eredményeket láthatunk, melyeket PET kapillárisokon mértek, óriási lerakódott töltés tartományon.

Később kimutatták [32], hogy az egyik laboratóriumból származó PET minták esetén szintén jelentkezett blokkolódás, és annak mértékét a mintában kialakított kapillárisok sűrűségével találták arányosnak. Erről az eredmények fejezetben részletesebben lesz szó, ezért itt nem térek ki rá.

#### 2.6 A kapillárisok terelésének modellezése, szimulációk

Az ionok terelődésének felfedezése óta összegyűlt kísérleti eredmények birtokában a kutatók különféle elképzeléseket vázoltak fel a jelenség lefolyásának leírására. Az ionterelés időbeli fejlődésének modellezése azért bonyolult feladat, mert térbeli és időbeli skálán is több nagyságrendet kell figyelembe venni. A töltésátadás és a lyukak gyors szétoszlása egy néhány nm-es zónában, néhány femtoszekundum alatt megy végbe. Az idő, ami alatt egy keV energiájú ion áthalad egy 10 µm hosszúságú kapillárison, körülbelül egy nanoszekundum. Amenynyiben feltételezzük, hogy a nyaláb átmérője egy milliméter, a kapillárisok átmérője 100 nm nagyságrendű, a besugárzó áram pedig 1 nA, akkor az az idő, amely alatt ugyanabba a kapillárisba egy másik ion is belép a nyalábból, körülbelül tized másodperces. Végül, a kapillárisok letöltődéséhez szükséges idő akár néhány óra is lehet. A folyamatok mind térben, mind időben sok nagyságrendet fognak át.

Mivel a dolgozatomban javarészt a lassú, nagytöltésű ionok terelődésében elért kísérleti eredményeimről számolok be, így a szimulációk terén az ilyen részecskék terelődésének modellezését részletezem. A szimulációkban általában klasszikus pályájú Monte Carlo számolással követik egy adott részecske pályáját az adott töltéseloszlás keltette térben. Az elektrosztatikus térben mozgó részecskére ható erő [121]:

$$\dot{\vec{p}}_i(r_i) = \vec{F}_i(t) = -\sum_i \vec{\nabla} V_j(\vec{r}_i) + \vec{F}_{other}(t)$$
(2.6.1)

A formula jobb oldalának első tagja a potenciál negatív gradiense, a második tag az egyéb erőket reprezentálja (szomszéd csatornák sztochasztikus hatása, tükörtöltés hatása, stb.). Az egyes részecskék pályáját lépésenként kell fejleszteni. Ha egy részecske pályája a kapilláris falában végződik, akkor a becsapódási pont a töltésvándorlás szimulációjának kezdőpontja, mely hatással van a következő részecskék pályájára. Ezután indítják az újabb részecske pályáját az újra számolt térben, kiszámolva a részecskére ható erőt. Ezt sokszor megismételve a kapott eredményeket átlagolják. Az így kapott átvitel hasonlítható össze a kísérleti eredményekkel. Az irodalomban található, szimulációkról beszámoló közlemények két csoportba sorolhatók. Közös jellemzőjük, hogy a pályaegyenleteket a kapilláris falakon jelenlévő ponttöltések terében fejlesztik a Newton-egyenletek numerikus megoldásával. Az elektrosztatikus tér meghatározása nagyon időigényes, hiszen minden ionbecsapódásnál a teljes tér változik. A számolások gyorsításának technikai részleteire itt nem térek ki. Lényeges különbségek vannak a becsapódott ionok által leadott töltések sorsának leírásában, azok felületi mozgásának modellezésében, valamint abban, hogy az egyéb erők közül melyeket építenek be a szimulációkba.

A Bécsi Műegyetemen kidolgozott technikával végzett Monte-Carlo szimulációkban [63, 64, 121] a töltések mozgását a szigetelő felületén és belsejében termikus diffúzióval modellezik, és a kialakuló elektromos tér ehhez adódó töltésmozgató (drift) hatását lineárisan kezelik ( $\vec{j} = \sigma \vec{E}$ , azaz az Ohm-törvény szerint). A tényleges szimuláció során a lerakódott töltéseket többnyire nem mozgatják, hanem a diffúziós állandókból és a vezetőképességekből meghatározott időállandóval exponenciálisan csökkentik. A mozgó ionok által a falakban keltett tükörtöltés hatását a kapilláris kimenetén figyelembe veszik a transzmisszió szögfüggésének leírása céljából [63, 64, 121].

A Stolterfoht által kidolgozott, szintén Monte-Carlo szimulációs technika [70, 72] a felületre lerakódott töltéseket a Kirchoff törvények "szigorú betartásával" mozgatja. A térfogati diffúziót is figyelembe képes venni, de annak hatását elhanyagolhatónak találja. A felületi vezetést a Frenkel-Poole mechanizmussal modellezi, a módszer természetesen lineáris közelítésben is használható. A mozgó ionok tükörtöltésének hatását nem integrálja, a kapilláris végein nulla potenciált biztosító fémréteg hatását viszont figyelembe veszi. Cikkeiben általános szabályszerűségek megállapítására törekszik, és többet fel is tár. Rámutat a kapilláris szemközti oldala felé történő töltésáramlás fontosságára [72] és megmutatja a bemeneti töltésfolt időbeli fejlődésének döntési szögtől való függését.

Mindkét modell egyszerre több (5-10) kapilláris fejlődését követi, majd ezeket átlagolja. Egyik modell sem veszi figyelembe a szomszédos csatornák közötti esetleges csatolást, és a többi csatorna töltődése miatt kialakuló kollektív tér hatását, pedig nagy sűrűségű minták esetén ezek meghatározóak lehetnek. A jelenlegi szimulációk nem tudnak a terelődési folyamat minden részletéről számot adni. Nem tudják leírni például a töltésvándorlás lassú komponensét, vagy a kapillárisok részleges blokkolódásának jelenségét. Ezért az általunk kísérletileg is megfigyelt, a nanokapillárisokon átvitt ionok időfejlődésének leírására mi is megpróbáltunk egy kielégítő elméleti modellt felállítani. Erről az "Eredmények" részben számolok majd be.

## 3. Kísérleti eszközök

Ebben a fejezetben a saját kísérleteim során használt berendezéseket ismertetem. Röviden bemutatom az ion-atom és atom-atom ütközéses kísérletekben használt repülési-idő spektrométert, valamint a mérési geometriát. Bővebben tárgyalom a kapillárisok ionterelését vizsgáló kísérletekben használt berendezéseket. A saját fejlesztésű spektrométert, bár szintén kísérleti berendezés, az *Eredmények* című fejezet 4.2 számú alfejezetében ismertetem majd.

# 3.1 Az 1 MV és 5 MV névleges csúcsfeszültségű Van de Graaff típusú iongyorsítók

Az atom-atom ütközéses kísérleteket az Atomki 1 MeV névleges csúcsenergiájú Van de Graaf (3.1.1 ábra) (VdG-1) típusú részecskegyorsító nyalábvégén végeztük. Ez a részecskegyorsító az elektrosztatikus gyorsítók családjának tagja, egy klasszikus, függőleges elrendezésű, egyvégű gyorsító, melyben az ionok egyenes vonalú pálya mentén gyorsulva mozognak. Az ionforrásban a rádiófrekvenciás térrel létrehozott pozitív töltésű ionokat (leggyakrabban protonokat) sztatikus elektromos tér gyorsítja a nagy potenciálú elektróda felől az úgynevezett gyorsítócső földpotenciálú vége felé. A gyorsításhoz szükséges nagyfeszültséget úgy állítják elő [137-139], hogy két forgó hengeren egy végtelenített, gumírozott textilszalagot hajtanak. A meghajtómotor a földpotenciálon lévő hengert forgatja. A szalag alsó részére egy feszültséggenerátorral összekötött, töltő tűsor segítségével töltéseket visznek fel. Ezeket a töltéseket a szalag a gyorsító felső részébe továbbítja, ahol a leszedő tűsoron át a földtől elszigetelt nagyfeszültségű elektródára kerülnek. Ennek feszültségét egy elektródrendszer osztóláncára is rávezetik, melynek feladata a gyorsító cső teljes hosszában egyenletesen térerősséget biztosítani. A nagyfeszültségű elektróda feszültségét az azon felhalmozott töltés határozza meg. Ezt a gyorsító feszültséget a szalagra történő töltésfelvitel sebessége és a kisütő áramok (az osztólánc árama és a gyorsított töltések árama) határozzák meg.



**3.1.1 ábra:** A Van de Graaff típusú gyorsító vázlatos rajza. A HV tápegység a T1 tűsorra folyamatosan töltéseket helyez. Innen a gumírozott textilszalag szállítja a töltéseket a nagyfeszültségű, földtől elszigetelt elektróda irányába, ahol a T2 leszedő tűsoron keresztül az elektródára kerülnek. Az ionforrásban előállított ionok ennek a nagyfeszültségnek a hatására gyorsulnak az alacsonyabb potenciálú hely irányába, majd az Analizáló mágnesen keresztül a nyalábcsatornában folytatják útjukat.

Lassú szabályzása a töltő tápegység feszültségével, gyors finomszabályzása egy kisütő elektródarendszer, az úgynevezett koronatrióda segítségével történik, elektronikus úton, vagy elektróda-mozgatással.

Azért, hogy a gyorsító minél nagyobb energiájú ionokat tudjon szolgáltatni, általában egy tartályban helyezik el, amibe nagy nyomású, nagy átütési szilárdságú szigetelő gázt töltenek. Az Atomki Van de Graaff gyorsítói esetén ez a gáz száraz nitrogén (N<sub>2</sub> 80 %) és széndioxid (CO<sub>2</sub> 20 %) keveréke.

A gyorsító ionforrásába bejuttatott gázból rádiófrekvenciás gerjesztéssel plazmát állítanak elő. Ebből a plazmából lépnek ki a keltett pozitív ionok, melyek a kivonó elektródán keresztül hagyják el az ionforrást. Innen a gyorsítócsőbe jutnak, melyen végig haladva egyenletesen gyorsulnak. Ez a részecskenyaláb az úgynevezett direkt nyaláb. A direkt nyalábban különböző fajtájú részecskék is előfordulhatnak. Ezért szükséges a direkt nyalábot mágneses térrel analizálni, mely tömeg/töltésállapot (m/q) szerint válogatja szét az ionokat. Az analizáló mágnes kimenő rése után már biztosan a megfelelő ionok nyalábja jut a nyalábcsatornába. Az ionnyalábot ionoptikai elemekkel (elektrosztatikus és mágneses terelő elemekkel és kvadrupól lencsékkel) irányítják, formálják, fókuszálják, hogy a felhasználók számára legmegfelelőbb részecskeszám és nyalábméret álljon rendelkezésre.

Az Atommagkutató Intézetben két Van de Graaff típusú gyorsító üzemel, a VdG-1 és a VdG-5. Az atom-atom ütközéses kísérleteket a Vdg-1 nyalábján hajtottuk végre. A VdG-5 gyorsító nyalábvégén végeztük a molekula-fragmentációs kísérleteket, amelyhez a párhuzamos síktükör spektrométert fejlesztettem.

## 3.2 Az atomi céltárgyak ionizációjának vizsgálatára, a VdG-1 nyalábvégen alkalmazott kísérleti eszközök

Az ion-atom és atom-atom ütközéses kísérletekben használt mérési elrendezés sematikus rajzát a 3.2.1 ábra mutatja. Ebben a részben többes szám első személyt használok, mivel a mérések előkészítésében is részt vettem. Az ábrán az az elrendezés látható, mikor a lövedék semleges hidrogén atom, H<sup>0</sup> volt. A méréseket elvégeztük proton lövedékkel is.

A semleges lövedéknyalábot protonokból állítottuk elő. A gyorsítóból kilépő protonok egy része az ütközési kamra felé vezető útja során a vákuumrendszer maradékgázainak részecskéivel ütközve, töltéscsere révén semlegesítődik. A kamrába lépés előtt egy elektrosztatikus eltérítő lemezpárral kitérítettük a nyaláb töltéssel rendelkező komponensét. Az egyenesen tovább repülő H<sup>0</sup> nyaláb végső irányát két, egymástól 50 cm-re elhelyezett kollimátor határozta meg, beállítva a nyalábátmérőt is, mely a kísérletekben 0,5 mm volt. A kollimátorokon



**3.2.1 ábra:** Az atom-atom és ion-atom ütközéses kísérletekben használt mérési geometria sematikus rajza. A céltárgyion-detektor (meglökött céltárgyion-analizátor) egy repülési-idő spektrométer, amely a jobb láthatóság miatt kinagyítva került ábrázolásra. A mérésben a start jelet a céltárgyion-detektor adta, a stop jelet pedig a szóródott lövedék. A

céltárgyion időben lassabban érkezik be a detektorba, mint a szóródott lövedék, ezért a mérő elektronikába be kellett építenünk egy késleltetést a szóródott lövedékek ágába. Ez az úgynevezett inverz koincidencia mérés.

létrejött ionokat egy elektrosztatikus nyalábtisztító szűrte ki, mely közvetlenül a gáz céltárgy előtt helyezkedett el. A kísérletek során ellenőriztük a nyaláb összetevőinek arányát, és azt tapasztaltuk, hogy a H<sup>0</sup> nyaláb H<sup>+</sup> szennyezettsége körülbelül 0,1 % volt.

A nyaláb és a céltárgy kölcsönhatásában létrejött céltárgy ionokat az ütközési térfogatból gyenge, homogén elektromos térrel vontuk ki. Az ionokat a tér a céltárgyion-spektrométerbe (amely a repülési idő mérésével határoz meg energiát) juttatta. A *q* töltésű ionok az analizátorban *qU* (*U*=3,1 kV) energiára gyorsultak, majd egy térmentes szakaszon átrepülve jutottak el a repülési-idő spektrométerbe (time of flight, TOF).



3.2.2 ábra: A repülési-idő (TOF) spektrométer elektródáinak elrendezése. Az E1 elektróda (20 V) taszító és az E2 elektróda (-20 V) vonzó tere vonja ki az ionokat az ütközési térfogatból. Az E2 kihúzó elektródára rácsot is rögzítettünk. E3: Fókuszáló elektróda (-150 V), E4: Gyorsító elektróda, szintén rács volt rajta (-3,1 kV), E5: A csatorna elektron sokszorozó (CEM) detektor belépő nyílása (-2,9 kV), E6: A CEM vége (-E4 E7 0,2 kV) és E7: a CEM gyűjtő elektródája (0 V).



**3.2.3 ábra:** Egy tipikus példa a mért spektrumokra: A kimenő H<sup>+</sup> lövedékkel koincidenciában mért, "meglökött" Kr<sup>q+</sup> részecskék nyers spektruma a 150 keV energiájú H<sup>0</sup> lövedékkel történt ütközésben. Az x tengelyen a csatornaszám, az y tengelyen pedig a beütések száma látható. Ennek elektróda elrendezését mutatja a 3.2.2 ábra. A TOF spektrométer működésének optimalizálását a SIMION 3D [140] program 8.0-ás verziójával végeztük. Ennek köszönhetően, a keltett céltárgy ionokat közel 100 %-os hatékonysággal gyűjtöttük be. A gyorsított ionokat egy kerámia csatorna-elektronsokszorozó (CEM) detektor regisztrálta.

A kilépő, szóródott lövedékeket egy elektrosztatikus eltérítő lemezpárral töltésállapot szerint szétválogattuk. Ezeket aztán egy gyors ion detektorral detektáltuk [141]. Ennek a detektornak a késleltetett jele szolgáltatta a STOP jelet a meglökött ionok repülési idejének méréséhez. A céltárgyion-detektor jelének és a szóródott lövedék detektor késleltetett jelének időkülönbségét egy idő-amplitúdó konverterrel (Time-to-Amplitude Converter, TAC) határoztuk meg. Sokcsatornás amplitúdó analizátorral (Multichannel Amplitude Analyzer, MCA) végeztük el a TAC kimenetéről kapott impulzusok amplitúdó- eloszlásának vizsgálatát. Egy tipikus, így kapott időspektrumot mutat a 3.2.3 ábra.

A kísérletek alatt a mérőkamrában a céltárgy gáz beengedése nélkül mért nyomás 10<sup>-6</sup> mbar volt, a céltárgy gáz beengedésével pedig 3×10<sup>-5</sup> mbar. A céltárgy sűrűsége elég alacsony volt ahhoz, hogy az egyszeres ütközések körülményeit biztosítsuk. Megmértük a háttérgázból származó, meglökött ionokhoz beszámítható járulékot is, mely kevesebb volt, mint 0,1 %.

A méréseket öt különböző lövedékenergián (75, 100, 150, 200 és 300 keV) végeztük. He, Ne, Ar és Kr céltárgy gázok időspektrumait vettük fel, H<sup>+</sup> és H<sup>0</sup> lövedékek esetén. A koincidencia vizsgálatokat a szóródott lövedékek q=0és q=+1 töltésállapotaira végeztük el. Megvizsgáltuk a szóródott ionok q=-1 töltésállapotával végződő reakciók hozamát is, de ilyen lövedékenergiákon elenyészőnek találtuk. A mérést addig folytattuk, míg a statisztikus hiba a kitűzött érték alá csökkent. Így a mérési idő 200 és 3000 s között változott az egyes spektrumok esetén attól függően, hogy az adott reakciócsatornának mekkora volt a hozama. A 3.2.3 ábrán látható spektrum felvétele pl. körülbelül 2100 s-ig tartott.

#### 3.3 Elektron ciklotronrezonanciás ionforrás (ECR, vagy ECRIS)

Az ECR ionforrást az 1960-as években fejlesztették ki. Azóta számos módosításon és generációváltáson átment a technológia. Felfedezték és kiaknázták a tekercsekben és mágnesekben, valamint a mikrohullám frekvenciájának módosításában rejlő lehetőségeket [142, 143].



**3.3.1 ábra:** Az ECR ionforrás felépítése. Az ionforrás plazmakamrájába juttatott gázból mikrohullámú gerjesztéssel plazmát állítunk elő. A plazmát állandó mágnesek és elektromágnesek által keltett mágneses mezők tartják egyben. A plazmakamrából a kivonó elektródán keresztül vonjuk ki a kívánt töltésállapotú és energiájú ionnyalábot ([142] alapján).

Ezáltal javult az ionok átlagos csapdázódási ideje, és a töltésállapot-eloszlás maximuma is a nagyobb töltésállapotok felé tolódott. Nőtt a kivont nyaláb stabilitása is. Magyarország egyetlen elektronciklotronrezonanciás ionforrása az Atomkiban működik. Ha az ionforrásból kivont ionokat nyalábvezető és nyaláboptikai rendszerekkel a céltárgyra irányítjuk, akkor az ionforrást önmagában is lehet kisenergiás gyorsítóként használni. Mivel méréseim túlnyomó többségét ezen kis gyorsító nyalábvégén hajtottam végre, ezért részletesen bemutatom.

Az ionforrás egyszerűsített, elvi felépítését mutatja a 3.3.1 ábra [142]. Az ionforrásban az atomok és a belőlük képződött alacsony lefosztottságú ionok ionizációját a forrás kamrájában létrejövő, mágnesesen csapdázott plazma nagyenergiájú, mikrohullámú térrel gyorsított elektronjai végzik. Ahhoz, hogy a magasabban ionizált töltésállapotok is létrejöhessenek, a mikrohullám által gyorsított elektronoknak elegendően nagy energiára kell szert tenniük. Ezen túl egy másik feltételnek is teljesülnie kell, mégpedig, hogy az ionok megfelelően hosszú ideig legyenek csapdázódva a plazmában. Ez utóbbi azért fontos, mert az ionok úgynevezett "step-by-step", azaz lépésenkénti ionizációval kerülnek magasabb és magasabb töltésállapotba.

Az állandó mágnesek és a tekercsek által keltett speciális mágneses mezőben a töltött részecskék az indukcióvonalak mentén mozognak spirális pályán. Növekvő indukciójú térrész felé haladva a sebességkomponensük előjelet is válthat, így lehet csapdázni őket. Amennyiben az elektron körüljárási frekvenciája,  $\omega = (e/m)B$  megegyezik a becsatolt mikrohullám frekvenciájával, teljesül az elektron-ciklotronrezonancia feltétele, és az elektron többletenergiát kap a mikrohullámtól. Ilyen módon az elektronok akár kilo-elektronvoltos energiákig gyorsulhatnak, és a szintén csapdázott ionokat sokszorosan képesek ionizálni. Ez a típusú ionforrás igen sokféle elemből, szinte a periódusos rendszer összes eleméből képes plazmát, így ionnyalábot is előállítani. Ezeken kívül létrehozható óriásmolekulákból (például fullerén) álló plazma is.

Az ECRIS kedvező tulajdonságai miatt sok nagy gyorsító ionforrásaként is ilyen típusú berendezést használnak. Az ionok energiáját a kivonó elektróda feszültsége, V határozza meg, mely tipikusan néhányszor tíz kV. Utógyorsítás nélkül az ionok energiája E=qV, így is több száz keV értéket elérhet.

## 3.4 Az ECR ionforrás nyalábvégén található mérőrendszer

A nanokapillárisok ionterelési tulajdonságainak megfigyelésére az ECR ionforrás nyalábvégén található mérőkamrát használtuk. Ebben az elrendezésben az ionforrásból kilépő ionokat 90° eltérítésű mágneses térrel analizáljuk. Ilyen módon megtisztítjuk a nyalábot a kívánttól esetlegesen eltérő, más töltésállapotú ionoktól. Az ionnyaláb formázását, pozíciójának finomhangolását különböző elektromos lencsék és finomeltérítő elemek biztosítják. A nyaláb a mérőkamrába lépés előtt két, egymástól körülbelül 20 cm-re elhelyezett, 0,5 mm átmérőjű kollimátoron halad át. Ezek a kollimátorok határozzák meg a nyaláb végleges átmérőjét, valamint a nyaláb széttartásának maximális értékét. A nyaláb átlagos nyalábvezetésnél Gauss-profilú, és divergenciája ~0,2° FWHM. A nyaláb pontos pozícionálását a mérőkamrában található, kívülről forgatható asztalra szerelt kétfokozatú Faraday-csésze segítette. A Faraday-csésze első fokozatának végén egy 1,2 mm átmérőjű kör alakú rés található. A nyalábvezetést addig állítottuk, míg ezen a résen áthaladva a Faraday-csésze hátsó ütemében maximális nyalábáramot mértünk. A forgatható szögasztalra felszerelt szögskála a már említett Faraday-csésze és a szintén az asztalra erősített detektor pozícionálását segítette.

A mérőkamra belső átmérője 380 mm, belmagassága 350 mm. Kétszeres mumetal mágneses árnyékolással van ellátva, mely a kamra középpontjában és annak 100 mm-es környezetében 1 mG alá csökkenti a mágneses indukciót. A kísérleti kamra tipikusan  $p=5\times10^{-7}$  mbar háttérnyomását turbómolekuláris szivattyú biztosítja.

A nanokapilláris-minták egy forgatható mintatartóra lettek felszerelve, melynek szögleolvasási pontossága ~0.1°. A kapillárisokon áthaladt részecskéket egy 40 mm átmérőjű pozícióérzékeny Multi Channel Plate (MCP) detektor fogta fel.



**3.4.1 ábra:** Az ECR ionforrás nyalábvégén található kísérleti elrendezés sematikus rajza.

A detektor előtt közvetlenül elhelyezett elektrosztatikus eltérítő lemezpár segítségével a detektorra érkező részecskéket töltésállapot szerint szét tudtuk válogatni. A 3.4.1 ábrán a kísérleti elrendezés vázlata, a 3.4.2 ábrán pedig egy tipikus felvétel látható, melyet az MCP-vel rögzíthetünk. Ez a kép 3 keV besugárzó energiájú <sup>22</sup>Ne<sup>7+</sup> nyalábbal készült. A minta polikarbonát (PC) anyagú. A minta dőlésszöge  $\Psi$ =1°. Az eltérítő lemezpár hatására a különböző töltésállapotú részecskék a kapillárisokon áthaladt nyalábban szétválaszthatók. Az ábra bal oldalán a viszonylag intenzív folt az elektronikába épített generátor-jel. Ennek több funkciója is van, jelzi, hogy a berendezés működik, ellenőrzi a kétdimenziós kép orientációjának helyességét, és folyamatosan monitorozza a berendezés holtidejét.

A mérési elrendezés lehetővé teszi a nyaláb gyors eltérítését. Ilyen esetekben a mérőkamrába töltések nem érkeznek. Ezt egy betolható Faraday-csészével ellenőrizni is tudjuk.

A mérések során több száz ilyen, kétdimenziós képet veszünk fel. Ez nagy mennyiségű adatot jelent. A képeket számítógép segítségével, a Juhász Zoltán munkatársam által *Mathematica* keretben megírt komplex, hibaanalízist is tartalmazó program használatával értékeltem ki.



**3.4.2 ábra:** Egy tipikus kép, melyet az MCP rögzít mérés közben. Ez a felvétel 3 keV-es <sup>22</sup>Ne<sup>7+</sup> ionok (alsó, intenzív folt) és a PC mintán áthaladás során semlegesítődött Ne atomok (felső, elmosódott folt) kétdimenziós eloszlását mutatja, a bal oldali viszonylag intenzív folt az elektronika generátor jele. A céltárgy dőlésszöge  $\Psi$ =1° volt. Az ionokat a semleges részecskéktől 1 kV szeparáló feszültséggel választottuk el.

## 4. Eredmények

Ebben a fejezetben a saját, doktori képzésem során elért fontosabb eredményeimet tekintem át a tézispontoknak megfelelő szerkezetben. Elsőként a nemesgáz atomokon végzett méréseket mutatom be. A következő eredményem egy speciális követelményeket kielégítő elektrosztatikus spektrométer megtervezése és megépítése a molekula-fragmentáció során kilépő ion-fragmentumok mérése céljából. Ehhez a SIMION ionoptikai szimulációs programot használtam. Az utolsó fejezet több alfejezetből áll össze. Ez utóbbi tézispont adja a saját eredményeim túlnyomó részét. Ebben a nanokapillárisok ionterelésének vizsgálatában elért eredményeket foglalom össze. Az egymástól elkülönülő eredményeket alpontokba tagolva részletezem.

## 4.1 Nemesgázok többszörös ionizációja H<sup>+</sup> és H<sup>0</sup> lövedékekkel való ütközésekben

Ebben a fejezetben ismertetem a nemesgázok (He, Ne, Ar, Kr) atomjain végzett méréseket, melyben azok többszörös ionizációját vizsgáltuk. A különböző lövedékekkel kiváltott többszörös ionizáció irodalmát összefoglaló, legutóbbi átfogó tanulmányt Montanari és munkatársai [144] jegyzik.

A vizsgálat motivációja a semleges atomok (céltárgy) és egyéb részecskék (lövedék) közötti ütközési mechanizmusok jobb megértése volt. Ezek a folyamatok a fizikában alapvető fontosságúak. A kutatásokban elért eredmények az élet számos területén jól hasznosíthatók, például a plazmafizikában, az anyagtudományokban, stb. A nyert adatoknak kiemelkedő jelentőségük van a sugárterápiás eljárások megtervezésében, kivitelezésében is. Ezen vizsgálatok már a legegyszerűbb lövedékek (elektron, proton, esetleg ezek antirészecskéi) esetében sem teljesen triviálisak.

A megértés következő lépcsőfokának tekinthető, ha pontszerű lövedékek helyett olyanokkal végezzük a kísérletet, melyek valamilyen szerkezettel, struktúrával rendelkeznek. Ilyen lövedékek lehetnek például részben ionizált atomok, semleges atomok, vagy például a pozitrónium. Az egyik legérdekesebb kérdés, hogy az ilyen lövedékekben az elektronok milyen szerepet játszanak az ütközés során? Lehetnek aktívak, de passzívak is. A passzív szerep azt jelenti, hogy az elektron csak árnyékolja a lövedék magjának Coulomb-terét. Az elektron aktív szerepe pedig azt jelenti, hogy a lövedék elektronja a céltárgy elektronjait maga is gerjesztheti, vagy ionizálhatja. Amennyiben a lövedék elektronja ilyen szerepet tölt be az ütközés során, akkor annak mozgását jól leírja a "kvázi-szabad elektron szóródás"-i modell. Ennek az elképzelésnek a keretén belül a lövedék elektronját szabad részecskének tekintjük, mely szabadon kölcsön hathat a céltárggyal, a lövedék magjától függetlenül. Ez a modell [145], sikeresen alkalmazható például a rezonáns elektronátadási és gerjesztési folyamatokra is [146].

Ezek mellett a H<sup>0</sup> atomnak kiemelkedő jelentősége van a plazmafizikában is: Rutinszerűen használják a plazma felfűtésére azt az eljárást, melynek során a plazmába semleges hidrogén atomok nyalábját lövik be. Ugyanakkor a semleges hidrogénnek plazmadiagnosztikai jelentősége is van, ez a gerjesztett H<sup>0</sup> atom legerjesztődése során kisugárzott fény mérésén (spektroszkópiáján) alapul. Annak ellenére, hogy a H<sup>0</sup> atom tulajdonságainak pontos ismerete milyen nagy jelentőségű, csak néhány olyan kísérlet van [147, 148], melyben az atomok többszörös ionizációját vizsgálták semleges hidrogén atommal történő ütközésekben.

A kísérletben nemesgáz céltárgy atomok többszörös ionizációs hatáskeresztmetszeteit, illetve ezek bombázó-energia függését mértük meg. A mérési elrendezést a 3.2 alfejezetben ismertettem. A méréseket öt különböző lövedékenergián (75, 100, 150, 200, 300 keV) végeztük. He, Ne, Ar és Kr céltárgy gázok időspektrumait vettük fel, H<sup>+</sup> és H<sup>0</sup> lövedékek esetén. Ezzel párhuzamosan vizsgáltuk a lövedéknek az ütközések következtében bekövetkező ionizációját is, amit a szakirodalom elektronvesztésnek, *"electron loss"*-nak nevez. A méréseket megismételtük azonos körülmények között proton lövedékekkel is. A mért adatokat elméleti számolások (CTMC és nCTMC) eredményeivel vetettük össze.

A méréseket koincidencia technikával végeztük, ennek eredményeként az alábbi, 4.1.1 ábrán látható típusú spektrumokat kaptuk. A mért koincidencia



**4.1.1 ábra:** Egy tipikus példa a céltárgy ionok időspektrumára a 300 keV H<sup>0</sup> + Kr ütközési rendszerben a kimenő H<sup>+</sup> lövedékkel koincidenciában mérve. A kripton egészen nagy (q=4) töltésállapotait is vizsgálni tudtuk. Az ábra "x" tengelyén az idő definíciója a lövedék és a céltárgy repülési idejével kifejezve:

 $t = (t_{lovedék} + \delta) - t_{céltárgy},$ ahol  $\delta$  a késleltetés. spektrumokból relatív hatáskeresztmetszeteket határoztunk meg. Abszolút  $\sigma_q^{ij}$ (ahol az *i* és *j* a lövedék kezdeti és végső, míg *q* a meglökött céltárgy ion töltése) hatáskeresztmetszeteket ezekből úgy származtattunk, hogy az adatainkat DuBois és Kövér [149] által elvégzett abszolút mérésekhez normáltuk. A normálást a H<sup>0</sup> + He ütközési rendszer esetén, *300 keV* lövedékenergia mérési pontján végeztük.

Mérési eredményeinket az elméletekkel összehasonlítva a 4.1.2 és 4.1.3 ábrákon mutatom be. Megállapítható, hogy a mért, egyszeres ionizációs hatáskeresztmetszetek energiafüggését (az ábrák (*a*) részében a  $\sigma_1^{11}$  és (*c*) részében a  $\sigma_1^{00}$ ) mindkét elmélet jól reprodukálja, mindkét lövedék esetében. Ugyanígy, H<sup>0</sup> lövedék esetében is igaz ez a megállapítás az egyszeres ionizációval egyszerre végbemenő lövedék-ionizáció (az ábra (*d*) részén a  $\sigma_1^{01}$ ) esetében. Proton lövedék esetén az elektronbefogási hatáskeresztmetszetek az energia növekedésével meredeken csökkennek (az ábra (*b*) részében), amelyet az elméleti számítások eredményei szintén jól leírnak, ugyanakkor az elméleti és kísérleti értékek nagyságrendi eltérést mutatnak.

Érdekes effektust figyeltünk meg kripton céltárgyat proton lövedékkel bombázva. A lövedék elektronbefogási csatornáját vizsgálva az eredmények szerint a lövedékenergia növekedésével a különböző ionizáltsági fokokhoz tartozó hatáskeresztmetszetek közötti különbségek eltűnnek (ld. a 4.1.3/b ábrán). A kétszeres ionizációs hatáskeresztmetszet még meg is haladja az egyszeres ionizációhoz tartozó hatáskeresztmetszetet. Ez a jelenség annak tulajdonítható, hogy 300 keV lövedékenergián a protonok sebessége megközelíti a céltárgy belső héjain lévő elektronok pályasebességét. Ebben az úgynevezett "velocity matching tartományban" megnő a lövedék elektronbefogási valószínűsége. A belső héjon keletkezett elektronhiány a céltárgyban végbemenő relaxációs folyamatok (Auger-folyamat) révén a külső héjakon további elektron(ok) kiszakadásához vezet.



**4.1.2 ábra**: A hélium céltárgynál mért (körök) és számított (folytonos vonal – nCTMC és szaggatott vonal – CTMC) egyszeres és kétszeres ionizációs hatáskeresztmetszetek proton és H<sup>0</sup> lövedék esetében a 75-300 keV energiatartományban. Az (a) panelen a tiszta, egyszeres ( $\sigma_1^{11}$ ) és kétszeres ( $\sigma_2^{11}$ ) ionizáció látható proton lövedék esetében. A (b) panelen a tiszta elektronbefogást ( $\sigma_1^{10}$ ) és a céltárgy ionizációjával együtt bekövetkező elektronbefogást ( $\sigma_2^{10}$ ) ábrázoljuk proton lövedék esetében. A (c) panelen H<sup>0</sup> lövedék esetében a céltárgy tisztán egyszeres ( $\sigma_1^{00}$ ) és kétszeres ( $\sigma_2^{00}$ ) ionizációja, a (d) panelen pedig H<sup>0</sup> lövedék esetében a lövedék ionizációjával egyidejűleg bekövetkező egyszeres ( $\sigma_1^{01}$ ) és kétszeres ( $\sigma_2^{01}$ ) céltárgy-ionizáció látható.



**4.1.3 ábra:** A kripton céltárgynál mért (körök) és számított (folytonos vonal – nCTMC és szaggatott vonal – CTMC) egyszeres, kétszeres és háromszoros ionizációs hatáskeresztmetszetek proton és H<sup>0</sup> lövedék esetében a 75-300 keV energiatartományban. A panelek ugyanolyan rendben követik egymást, ahogyan azt az 4.1.2 ábra szövegében leírtam.

Összefoglalva, a kísérletekben 75-300 keV energiájú protonokat és H<sup>0</sup> atomokat ütköztettünk nemesgáz atomokkal. Vizsgáltuk a semleges hidrogén elektronjának szerepét az ütközésekben. Azt találtuk, hogy a H<sup>0</sup> lövedék átlagosan 20-50 %-al kevésbé hatékonyan ionizál, mint a proton. Ezt alátámasztja az alkalmazott nCTMC modell is. Ez azt mutatja, hogy a H<sup>0</sup> elektronja leginkább passzív, árnyékoló szerepet játszik az ütközésekben.

Ehhez a munkához a hozzájárulásom: az előkészítő fázisban megépítettem egy gázbeeresztő rendszert, ami jelenleg is használatos; részt vettem minden mérésben, a kísérleti adatok kiértékelésében, valamint az eredmények értelmezéséről folyó vitákban és megbeszélésekben. Ehhez a tézisponthoz a [150, 151] közlemények tartoznak, melyekre eddig két SCI hivatkozás van.

#### 4.2 Kompakt párhuzamos síktükör spektrométer tervezése

Ebben a részben eszközfejlesztő munkát mutatok be, melynek során molekulafragmentációs kísérletek elvégzésére terveztem és megépítettem egy 45°-os párhuzamos lemezpár (parallel plate, PP) analizátort tartalmazó spektrométert. A tervezés motivációja az Atomi Ütközések Laboratóriumában akkor még csak meghonosítandó molekula-fragmentációs kísérletek egyik feltételének biztosítása volt. Nem állt ugyanis rendelkezésre olyan mérőeszköz, ami alkalmas lett volna ilyen mérések kivitelezésére.

A molekula-fragmentációs kísérletek során a gyorsító ionnyalábját egy molekuláris gáznyalábon vezetjük át. Ez az úgynevezett "crossed beam" kísérleti technika. A létrejövő ion-molekula ütközések következtében a céltárgy molekulái ionizálódnak, kisebb-nagyobb daraboka töredeznek (fragmentálódnak) az ütközési zónából pedig töltött és semleges részecskék sokasága repül ki. Ha a kirepülő részecskéknek valamilyen fizikai mennyiség szerinti eloszlását vizsgáljuk, akkor egy úgynevezett spektrumot kapunk. A megfigyelést végző berendezést spektrométernek nevezzük. Munkám során egy elektrosztatikus spektrométert terveztem és készítettem, amely a kirepülő ionok energia (pontosabban energia/töltés) szerinti eloszlását méri, de természetesen elektronok energiaspektrumának felvételére is alkalmas. Az alábbiakban röviden áttekintem az elektrosztatikus spektrométerek típusait, majd bemutatom az általam tervezett mérőeszközt.

Az elektromos töltéssel rendelkező részecskék elektromos és mágneses térben a Lorentz-erő hatására térülnek el:

$$\boldsymbol{F}_{Lorentz} = q\boldsymbol{E} + q(\boldsymbol{\nu} \times \boldsymbol{B}), \qquad (4.2.1)$$

ahol a q az elektromos töltés, **E** az elektrosztatikus térerősség vektor, **v** a részecske sebességvektora, **B** pedig a mágneses indukció vektora. A részecskék kinetikus energiájának meghatározása tehát elektromos és mágneses terek alkalmazásával történhet. Kis kinetikus energia tartományban, ahol a részecske se

bessége alacsony, a képletből kiolvashatóan a mágneses tér hatása a kis sebességek felé fokozatosan csökken. Az elektromos tér eltérítő hatása viszont nem függ a részecske sebességétől. Így ebben az energiatartományban kézenfekvő elektrosztatikus spektrométereket használni. A mágneses spektrométerek a nagy (relativisztikus) sebességű részecskék mérésére kínálnak jobb alternatívát.

Az elektrosztatikus spektrométerek főbb típusai [152]:

- Energia-diszperzív spektrométerek:
  - Eltérítő típusú spektrométerek: Az ilyen típusú spektrométerekben a részecskék pályája az ekvipotenciális felületekkel párhuzamos. Ilyen pl. a henger-kondenzátor spektrométer.
  - Tükör típusú spektrométerek: Ezekben a spektrométerekben a részecskék egy fékező potenciálú elektróda felé közelítenek, amely elektróda az adott részecskét eltéríti, esetleg visszafordítja. Az ilyen spektrométerek síktükör, hengertükör vagy félgömb típusú analizátort tartalmazhatnak.
  - Fékező típusú spektrométerek: Ebben a típusban a detektor előtt egy potenciálgátat hoznak létre egy elektródára adott feszültség segítségével. A töltött részecskék ezen potenciálgát ellenében mozognak, és csak azok a részecskék érik el a detektort, amelyeknek energiája elegendő a potenciálgát leküzdéséhez.

Létezik még egy spektrométer típus, melyben gyakran alkalmaznak elektrosztatikus teret a részecskék energiájának meghatározásakor. Ez az úgynevezett repülési-idő spektrométer (Time-of-flight, TOF), illetve annak bonyolultabb változatai (például a Recoil Ion Momentum Spectroscopy (RIMS) és ennek változatai), melyeket mégsem sorolunk az elektrosztatikus spektrométerek közé. Ezekben a részecske repülési idejét mérik nagy pontossággal, és ebből határozzák meg annak energiáját.

Szeretném felhívni a figyelmet az elektrosztatikus spektrométerek azon fontos tulajdonságára, mely szerint a részecskéket azok energiája szerint (nem pedig sebességük) különbözteti meg. Ezért az ilyen típusú spektrométerek ionok és elektronok vizsgálatára is alkalmasak.

Az általam tervezett elektrosztatikus párhuzamos síktükör lemezpár analizátorra épülő energia-diszperzív spektrométer. Az ilyen spektrométerek fontosabb jellemzői:  Az egyik legfontosabb az úgynevezett lineáris diszperzió (D). A diszperzió egy hosszúság dimenziójú mennyiség, mely azt adja meg, hogy, ha minden egyéb paramétert (belépési szög, feszültségek) rögzítünk, akkor a részecske energiájának relatív változása mennyivel tolja el a leképzés x helyét. Definíciója:

$$D = E \frac{dx}{dE} \tag{4.2.2}$$

 A (relatív) energiafeloldás: Ez a mennyiség megadja, hogy a névleges energiával (E) érkező töltött részecskék mellett mekkora az az energiatartomány (ΔE), amellyel rendelkező részecskék még átjutnak az analizátoron és elérik a detektort. Az energiafeloldást az analizátor ki- és belépő réseinek nagysága (S1 és S2), a spektrométer lineáris nagyítása (M) és lineáris diszperziója (D), valamint a leképezési hibák (H) határozzák meg:

$$R = \frac{\Delta E}{E} = \frac{MS_1 + S_2 + H}{2D}$$
(4.2.3)

Megjegyezzük, hogy a lineáris nagyítás többnyire, és esetünkben is M=1.

- Befogadó térszög: Ez a teljes, 4π térszögnek az a része, amelyből a spektrométerbe érkeznek a részecskék.
- A spektrométer fényerejének nevezzük a középponti szöghöz tartozó térszöget.
- A luminozitás a forrás területének és a fényerőnek a szorzata.
- Transzmisszió (*T*): Ez adja meg, hogy a spektrométeren áthaladva a pontforrásból kiinduló részecskék mekkora hányada éri el a detektort.
- Spektrométerfüggvény: monoenergiás nyalábot feltételezve megadja, hogy a detektált részecskék számának milyen az eloszlása az eltérítő elektródára adott feszültség függvényében.
- A spektrométer konstans (k), ami megadja, hogy milyen a viszony a hátlapra adott feszültség, és a réseken éppen átmenő töltött részecskék energiája között: k=U/E.

A fontosabb tulajdonságok megismerése után röviden tekintsük át, hogyan működik a párhuzamos lemezpár spektrométer [64].

A párhuzamos lemezpár spektrométer analizátora két, egymástól *d* távolságra, egymással párhuzamosan elhelyezett lemezből áll. A két lemez közül az egyik, az alaplemez, többnyire földelt elektróda. Ezen a lemezen találhatók az analizátor

be- és kilépő rései, melyeknek mérete és egymástól való távolsága meghatározza az analizátor relatív energiafeloldását. A másik lemezre tetszőlegesen beállítható V potenciál adható. Az ionok a belépő résen át jutnak be az analizátorba. Az E/qfajlagos energiával érkező részecskék a hátlapra adott megfelelő feszültség hatására a V/d nagyságú elektrosztatikus térben lassulni kezdenek, pályájuk az eredeti iránytól eltér. Csak azok a részecskék hagyhatják el az analizátort a kilépő résen keresztül, melyeknek megfelelő a töltésük és energiájuk. Mint már említettem, az ilyen párhuzamos lemezpár analizátor energia per töltés (E/q) szűrőként funkcionál. A spektrométer működési elvét a 4.2.1 ábra mutatja.

A töltött részecske mozgását az analizátorban az alábbi differenciálegyenletek írják le:

$$\frac{d^2x}{dt^2} = 0$$
(4.2.4)
$$\frac{d^2y}{dt^2} = \frac{qe}{m}\varepsilon$$

Itt a q a részecske töltésállapota, e az elemi töltés, m a részecske tömege, míg  $\varepsilon$  az elektromos térerősséget jelöli.

Ezeknek az egyenleteknek a megoldásai a következők:

$$x = v \cos \theta t,$$
  

$$v = v \sin \theta t - \frac{qe}{2m} \varepsilon t^{2}$$
(4.2.5)



**4.2.1 ábra:** A párhuzamos lemezpár analizátor sematikus rajza és működési elve. Az L a két rés távolságát, a w a rések méretét jelöli. Amennyiben a hátlapra (felső lemez) megfelelő feszültséget adunk, a töltött részecske a kilépő résen át a detektorba jut [153]. Ezekből meghatározható az analizátorban mozgó részecske pályaegyenlete, melyet általános esetben a következő kifejezés ír le:

$$y = x \tan \theta - \frac{q e \varepsilon}{2m v^2 \cos^2 \theta} x^2$$
(4.2.6)

Amennyiben a részecske 45°-os szögben lép be az analizátorba, akkor az egyenlet az alábbi alakba egyszerűsödik:

$$y = x - \frac{qe\varepsilon}{mv^2}x^2 = x - \frac{qe\varepsilon}{2E}x^2$$
(4.2.7)

Itt az *E* az adott részecske kinetikus energiáját jelöli. A pályaegyenletből meghatározható, hogy az adott energiával belépő töltött részecske milyen maximális távolságot tesz meg az analizátorban:

$$x_1 = 0$$

$$x_2 = \frac{2E}{qe\varepsilon} = L$$
(4.2.8)

Azaz, az analizátor be- és kilépő réseinek távolsága (L) a részecske energiájától és a lemezek között alkalmazott térerősségtől függ. A spektrométer lineáris diszperziója pedig (4.2.2) és (4.2.8) alapján D=L.

Az analizátor megtervezéséhez még tudnunk kell, hogy a benne repülő részecske pályája mekkora maximális magasságot ér el. Ez szabja meg ugyanis, hogy az analizátor két lemezét milyen távolságra kell egymástól elhelyeznünk:

$$h = \frac{E}{2qe\varepsilon} = \frac{L}{4} . \tag{4.2.9}$$

Itt *h* jelöli a részecske pályájának magasságát. A fenti összefüggés tehát azt mondja meg, hogy a részecske pályájának magassága a két rés távolságának a negyede lesz, vagyis a két lemezt minimum 0,25L távolságra kell helyezni egymástól. Ahhoz, hogy a részecskék biztosan ne ütközzenek bele az analizátor felső lemezébe, észszerű a lemezek közötti távolságot ennél valamivel nagyobbra választani. A biztonság szempontjából elegendő, ha ez a távolság 0,3L. Így kiszámítható az analizátor felső lemezére adandó feszültség:

$$\varepsilon = \frac{V}{d} = \frac{V}{0.3L} \tag{4.2.10}$$

azaz:

$$V = 0.3L\varepsilon = 0.6\frac{E}{q} \tag{4.2.11}$$

A voltban mért feszültséget az elektronvoltban mért kinetikus energia 0,6-szorosára kell beállítanunk, hogy a részecskék biztosan átjussanak az analizátoron. A spektrométer konstans tehát k=0,6.

Amennyiben az analizátorba belépő részecskék pontforrásból indulnak ki, az irányukat rögzítjük és eltekintünk az aberrációs hibáktól, akkor azt a  $\Delta E$  energia-ablakot, amelyben az átvitel eltér nullától (az átvitel talpszélességét), az alábbi egyenlet megoldása adja (lásd (4.2.3)):

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{\Delta x}{L} \tag{4.2.12}$$

ahol  $\Delta x$  a kimenő rés szélessége. Ha a részecskék nem pontforrásból, hanem az ugyancsak  $\Delta x$  szélességű résen lépnek be az analizátorba, akkor a nullától eltérő átvitel energiában mért talpszélessége kétszerese lesz a fentebbi értéknek. Azonos  $\Delta x$  méretű kimenő és bemenő rések esetén a félértékkel definiált energiafeloldás értéke:

$$\frac{\Delta E_{FWHM}}{E} = \frac{\Delta x}{L} \tag{4.2.13}$$

Amennyiben a részecskék nem rögzített irányból, hanem egy véges szögtartományban lépnek be az analizátorba, és figyelembe vesszük a különböző torzításokból származó hibákat is, akkor a tényleges energiafeloldás ettől némileg nagyobb lesz. Ha az energia feloldás 3 % körüli, akkor ez a kiszélesedés nem több néhány tized százaléknál, ami ezzel a spektrométerrel folytatott mérések esetében elhanyagolható.

Az analizátor és vele együtt a teljes spektrométer tervezését elsősorban azok a speciális elvárások, követelmények vezérelték, amelyeket az elvégzendő kísérletek támasztottak. Mivel az eszközzel molekulák fragmentálódását akartuk vizsgálni, egy kicsi, kompakt berendezésre volt szükség. A kompaktság azért fontos, mert az ütközésből kilépő részecskék az ütközési zónától a detektálásig tartó pályájuk során a vákuumkamrában a maradékgázokon áttöltődhetnek, semlegesítődhetnek. Ez torzítja a mért spektrumot, a kísérlet szempontjából ez nemkívánatos jelenség. Így a tervezés egyik fő szempontja a töltött iontöredék részecskék pályahosszának minimalizálása. A spektrométer tervezése során az ütközési térfogattól a detektorig tartó úthosszt sikerült ~10 cm-re rövidíteni. Az ismert elektrosztatikus spektrométer típusok közül a 45°-os párhuzamos síktükör analizátorában a legrövidebb a részecskék által bejárt pálya. A geometria egyszerűsége miatt egy ilyen spektrométer nagyon kis méretben legyártható. Az elektródák kis mérete miatt fellépő tértorzulásokat kielégítően lehet kompenzálni.

Emellett a spektrométer energiafeloldása elfogadható kellett, hogy maradjon. Az energiafeloldást a be- és kilépő rések mérete, illetve a rések közötti távolság határozza meg (ld. (4.2.12)). A tervezés során az optimális méretek a következőknek adódtak: a rések effektív mérete 1 mm, míg a rések közötti távolság 30 mm. Ez 3,33 %-os névleges energiafeloldást jelent, amelyet a leképezési hibák kb. 3,6 %-ra növelnek. A kivágandó résméret meghatározása az analizátor 45°-os dőlésszögének, valamint az alaplemez 0,2 mm-es vastagságának figyelembevételével történt. A lemez síkjában adódó résméret ezért 1 mm-nél némileg nagyobb: 1,2 mm. Az energiafeloldás ugyan nem tűnik elsőre túl jónak, sok spektrométer létezik, amelyeknek az energiafeloldása 10<sup>-4</sup>-es nagyságrendbe esik, de ezek általában nagy berendezések, nagy úthosszal, kisebb fényerővel. Az általam tervezett kisméretű, kompakt berendezéssel gyorsan lehet spektrumokat felvenni, miközben az ionspektrumokban jelen levő, tipikusan nem éles csúcsokból álló struktúrák sem tűnnek el. Szükség esetén a feloldás fékezéssel amúgy is javítható.

A spektrométerrel szemben támasztott további követelmény az volt, hogy a lehető legnagyobb megfigyelési szögtartományt lefedje. Ez a spektrométer alakjának körültekintő megválasztásával érhető el. A spektrométer alakja így felülnézetből ék alakra hasonlít. Ezzel sikerült elérnem, hogy a berendezés a 15°-165° megfigyelési szögtartományban legyen képes méréseket végezni.

A spektrométert úgy terveztem meg, hogy a belépő részecskéket gyorsítani, illetve lassítani is lehessen vele. Ez a funkció a mérések minőségének javítását segíti. Fékezéssel a feloldás, gyorsítással pedig a nagyon alacsony energiájú részecskék észlelése javítható. Mindezt a spektrométer belépő rése és az analizátor belépő rése közé tervezett elektrosztatikus lencsével valósítottam meg. A lencse tulajdonságait, paramétereit a SIMION programcsomag segítségével határoztam meg. Ez a program elektrosztatikus, illetve mágneses ionoptikai elemek tulajdonságait, illetve azoknak a részecskék mozgására, pályájára gyakorolt hatásait vizsgálja.



**4.2.2 ábra:** A tervezett spektrométer sematikus rajza. Az ábra bal oldalán a spektrométer oldalnézete, míg jobb oldalán a felülnézete látható. Ezen a rajzon még nincs megjelenítve az elektronsokszorozó detektor, valamint a térlezáró lemezek feszültségét leosztó áramköri elem és az elektromos vezetékek csatlakozásai sem.

A programban fel lehet építeni tetszőleges elektróda elrendezést, az elektródákra feszültséget lehet adni, majd tetszőleges töltött részecskéket indítva azok mozgása, pályája az elektródák feszültségének függvényében kirajzolódik. A spektrométer méreteit a mérési geometria és a mérőkamra geometria adottságai határozták meg. Szerkezeti felépítése a 4.2.2 ábrán látható. Az ábra bal oldala a spektrométert oldalnézetben, míg jobb oldala felülnézetben ábrázolja. A felülnézeti képen megfigyelhető a spektrométer speciális, "ék", vagy "balta" alakja.

Az ütközési térfogat a henger alakú, nagy átmérőjű ( $d=^1$  m) mérőkamra függőleges tengelyében helyezkedik el. Ezen tengely mentén áramlik be a mérendő céltárgy gáz. Ennek a gáznyalábnak és a VdG-5 gyorsítóból jövő ionnyalábnak a keresztezésében alakul ki az ütközési zóna. Ennek kiterjedését az ionnyaláb átmérője ( $d_{ionnyaláb}=^2$  mm), valamint a gázbeeresztő rendszer végére szerelt fúvókából kiáramló gáz szétterülése határozza meg. Az ütközési hossznak nincs jól definiálható mérete, mivel a fúvókából kiáramló céltárgy gáz sűrűsége a fúvóka tengelyétől távolodva folyamatosan változik, csökken. Az a jobban behatárolható, úgynevezett effektív céltárgy hossz, amit ebből a spektrométer lát a  $\theta =$ 90° megfigyelési szög esetében:  $L_{eff}=6,5$  mm. A spektrométer befoglaló méreteit (milyen távol helyezkedhet el minimálisan az ütközési térfogattól, milyen távol kell elhelyezkednie az analizátor belépő résének ugyanonnan, stb.), a mérőkamra méretei határozzák meg. Ennek átmérője 1000 mm, amelyet egy kétrétegű mágneses árnyékolás kissé csökkent. A spektrométert a mérőkamrában található, forgatható szögasztalra szereltem fel, melynek belső átmérője 265 mm. Az ütközési térfogat középpontjából kiinduló két,  $\alpha = 30^{\circ}$  nyílásszögű félegyenes szabja meg a "balta" oldalirányú kiterjedését. A spektrométer bemenő rése a céltárgytól *L*=~22 mm-re lett elhelyezve, így a spektrométer csőrének (ami egy csonkakúp) kisebb átmérője 9 mm-re adódott, ami egy jól kézben tartható, mechanikusan viszonylag könnyen kialakítható méret. A csonkakúp magassága *m*=10 mm, ennek talpától mérendő a spektrométer dobozának *L*<sub>spm</sub>=100 mm-es mérete. Ezt a méretet a forgatható szögasztalra való könnyű felszerelhetőség adta. Ezen belül kellett elhelyeznem az analizátort és minden egyéb szükséges alkatrészt.

A spektrométer belépő résének magasságát a szögasztal és a gyorsítóból jövő ionnyaláb kamrába lépési magassága adja meg, ami  $M_{nyaláb}$ =75 mm. A spektrométer teljes magasságát a belső szerelvények igényei szabták meg, ezt  $M_{spm}$ =145 mm-re választottam.

Az analizátor főbb paramétereit (résméret, réstávolság, energiafeloldás), megválasztva, annak geometriáját a befoglaló mérettartomány alapján terveztem meg. Az alaplap és a hátlap a bemenő rés irányában keskenyedik. A kis méretek miatt úgynevezett térlezáró lemezeket kellett beépítenem. A térlezáró lemezek az analizátor két lapja között kialakuló elektrosztatikus teret homogénebbé teszik, így a részecskék pályája az analizátor belsejében közel ideálissá tehető. A SIMION programmal végzett modellezés azt mutatta, hogy a megfelelő elektrosztatikus tér kialakításához négy térlezáró elektróda elhelyezése szükséges az analizátorban. Ezekre a megfelelő feszültséget egy, az analizátor hátlapjának feszültségéhez kapcsolt feszültségosztóval állítottam be. A feszültségosztóba speciális, nagy feszültséget tűrő ellenállásokat építettem be, ezáltal nagy energiákig (~5 keV) képes a spektrométer részecskéket analizálni. Az analizátorról készült fotó látható a 4.2.3 ábrán. Az elektródákat galvanikus úton, vékony aranyréteggel vonattuk be, hogy kis átmenő energiákon is lehetőleg torzítatlan átvitelt kapjunk, amikor a különböző anyagi minőségű fémek között kialakuló kontaktpotenciálok már megzavarják a mérést. A gyorsító-fékező lencse geometriájának háromdimenziós modelljét a SIMION-ban építettem fel (4.2.4 ábra).



**4.2.3 ábra:** Az ábra bal oldalán az analizátor térlezáró lemezei, valamint az analizátor alaplapja a be- és kilépő résekkel látható. A jobb oldalon a spektrométer összeszerelt analizátora. Az elektródákra galvanizálással vékony aranyréteget vittünk fel. Az aranyréteg a különböző anyagi minőségű fémek között fellépő kontaktpotenciálok kialakulását csökkenti, így viszonylag alacsony energiától (~2 eV) is végezhetők mérések az eszközzel.

A spektrométer tesztelése során azt tapasztaltuk, hogy ezzel a módszerrel sikerült ~2 eV-re beállítani azt a határt, amely felett a mért spektrumok megbízhatóan reprodukálódnak. Méréseket ez alatt is, kb. 0.3 eV energiától tudunk végezni, a spektrumok ezen szakaszai azonban csak kvalitatív indikációra használhatók, mert a hosszú távú reprodukálhatóság itt nem kielégítő.

Ezt az elektróda-elrendezést mutatja a 4.2.5 ábra az X-Z síkban, amelyen a kételemes lencséről egy metszeti képet látunk. A rendelkezésre álló kis térfogatban ennél bonyolultabb lencserendszer kialakítására nem volt lehetőség. Az ábrán a barna négyzetrácsos részek a kialakított elektródákat jelölik. Az ábrán a zölddel jelölt rész a különböző részecskék pályájának vonala a lencsére adott feszültség hatására. Egy-egy futtatásban tízezer darab részecskének a pályáját követtem nyomon. A részecskéket kör alakú forrásból indítottam, melynek sugara a belépő résmérettel azonos volt. A részecskék eloszlása a körön belül véletlenszerű volt. Széttartó nyalábot tételeztem fel, melynek félszöge 2,56°, a céltárgy geometriájából adódott. A futtatások során a lencse tulajdonságait a lencsefeszültség és átmenő energia hányadosának függvényében vizsgáltam. A lencsének a 4.2.5 ábrán látható üreges felépítése a futtatások során alakult ki. Gyorsítás esetén arra törekedtem, hogy a lencse minél szélesebb gyorsítási arány tartományban az analizátor bemenő réséhez közeli pontba fókuszálja a részecskéket.



**4.2.4 ábra:** A spektrométer lencséjének modellezése a SIMION nevű program segítségével három dimenzióban. A barna színnel jelölt részek az elektródák. A zöld színnel jelölt rész az egyes részecskék pályáit jelöli.



**4.2.5 ábra:** A spektrométer lencséjének kétdimenziós képe az X-Z síkon. Látható, hogy a széttartó bejövő nyaláb a lencse előtt veszteséget szenved, de az átjutó ionokat a lencsére adott gyorsító feszültség (-250 V) nagyjából az analizátor bemeneti résének helyére fókuszálja.



**4.2.6 ábra:** A mérési elrendezés, melyben a spektrométert használjuk. Az Atomki 5 MVos gyorsítójából érkező ionnyalábot különböző ionoptikai elemekkel formáljuk és irányítjuk a mérőkamrába. Itt a gyorsító ionnyalábja keresztezi a gázbeeresztő rendszerből érkező gázmolekulák útját. Ennek során ütközések jönnek létre, ahonnan különböző részecskék repülnek ki. Ezek a kirepülő részecskék a spektrométerbe jutva analizálásra, majd detektálásra kerülnek.

Fékezés esetén pedig arra, hogy minél szélesebb tartományban egyenletes legyen a relatív veszteség. A lencse alakja természetesen kompromisszumok eredménye. A modellezés szerint a fókuszálás az  $E_{pass} = E$  és  $E_{pass} = 6E$  közti (hatszros és az alatti gyorsítás) tartományban tekinthető kielégítőnek, a fékezési veszteség pedig az  $E_{pass} = E$  és  $E_{pass} = E/3$  közötti tartományban tekinthető elfogadhatónak. A spektrométer alkalmazása során fékezéssel és gyorsítással csak ritkán mértünk, ekkor nagyjából a modellezés alapján várt eredményeket kaptuk.

A spektrométert az Atomki mechanikai műhelyében készítették el, a folyamatot végig felügyeltem. Az alkatrészek aranyréteggel történő bevonása után a spektrométert összeszereltem, és beépítettem a kísérleti kamrába. A teljes mérőrendszer sematikus képét a 4.2.6 ábra mutatja.

A kísérleti kamra az Atomki 5 MV-os Van de Graaff típusú részecskegyorsítójának több felhasználó által is használt, jobb-30°-os nyalábvégén található. A mérőhelységbe érve az ionnyaláb egy kollimátoron (K1) keresztül a 15°-os eltérítő kamrába lép. Ez az eltérítő kamra a teremben elhelyezett egyéb, nagyméretű, rögzített helyzetű mérőberendezések, valamint a nyaláb további tisztítása (nemkívánatos töltésállapotok) miatt szükséges. Az eltérítő kamra kilépő nyílásán (K2) a nyaláb további kollimálását végezzük. A nyalábcsatornán horizontálisan és vertikálisan elhelyezett lemezpárok (steerer-ek) segítségével a nyaláb irá-

nya finoman állítható. A méréseket 2×2 mm méretűre kollimált nyalábbal végezzük. Ezt a nyalábméretet alakítja ki a résnégyes (R4). Ezután a kamrába belépő nyaláb irányát pontosan definiáló kollimátorok (K3 és K4) következnek, melyek közül az első fixen felszerelt, míg a második a kamrában található forgatható gyűrűk egyikére van rögzítve. A kamra átellenes oldalára felszerelt, két részből álló Faraday-csésze gondoskodik arról, hogy mérés közben az áram intenzitását monitorozni tudjuk. A Faraday-csésze első fokozatának végén található 1,5 mm-es kör alakú rés, valamint a K2-K4 kollimátorok és az R4 együttes egy pontos, jól definiált ionnyalábot eredményez. A mérőkamra (~1 m<sup>3</sup> térfogatú) rozsdamentes acélból készült. A belsejében kétrétegű mágneses árnyékolás található, mely a Föld mágneses mezőjét minimálisra csökkenti a kamrán belül. A kamrában két, koncentrikusan felszerelt, egyenként forgatható gyűrű helyezkedik el. Ezek közül a belsőre rögzítettem a spektrométert. A kamrába felülről nyúlik be a gázbeeresztő rendszer végére szerelt fúvóka. A mérőkamrában a vákuum előállításáról két darab, egyenként 2000 l/s szívósebességű turbómolekuláris szivattyú gondoskodik. Ezek egymáshoz képest párhuzamosan vannak bekötve. Az elővákuumot egy rotációs szivattyú állítja elő, amelyet egy Roots-tipusú elővákuum szivattyú is segít. A kamrában ~8×10<sup>-7</sup> mbar a gázbeeresztés nélküli, míg a mérendő gázt beengedve 3×10<sup>-6</sup>-1,5×10<sup>-5</sup> mbar nyomás érhető el.

A spektrométer energia szerinti kalibrálását ismert energiájú He autoionizációs és Ar LMM Auger vonalak mérésével végeztük el. Gyors, hozzávetőleges kalibrálásra illetve ellenőrzésre a molekuláris rendszerek mérése közben is van lehetőség. A 4.2.7 ábra a 650 keV N<sup>+</sup> + CH<sub>4</sub> ütközési rendszer vizsgálata közben mért elektronspektrumot mutatja 60° megfigyelési szögnél. A spektrumban jól azonosíthatók mind a lövedékről, mind pedig a céltárgyról származó Auger-elektron-átmeneteknek megfelelő vonalcsoportok csúcsai. Ezek energiái hibahatáron belül megegyeznek a szén ~250 eV-es, illetve a nitrogén (60° megfigyelési szögnél 430 eV-es) várható értékeivel

A spektrométer üzembe helyezése óta több abszolút mérést is végeztünk vele molekuláris céltárgyakon. A mérésekből több tudományos közlemény született [154, 155], kettő közülük a Physical Review A-ban került publikálásra. Ezek az eredmények egy másik doktori értekezés alapját képezik, de eredményemnek tekintem, hogy azokat a méréseket ezzel az eszközzel végeztük el.



**4.2.7 ábra:** A 650 keV N<sup>+</sup> + CH4 ütközési rendszerben, 60° megfigyelési szögnél mért nyers spektrum. Jól látható a lövedék (650 keV N<sup>+</sup>) és a céltárgy (metán, CH4) KLL Auger-csoportja. melyek a korlátozott feloldás miatt egyetlen csúcsként jelentkeznek. A céltárgy Auger-csúcsának energia pozíciója független a megfigyelési szögtől. A lövedék Auger-csúcsának energiája a megfigyelési szög függvé-

nyében változik, folyamatosan csökken a megfigyelési szög növekedésével.

A spektrométer tervezése teljes egészében a saját munkám. Én dolgoztam ki az adott peremfeltételeknek megfelelő megoldást, magam állítottam öszsze és futtattam le a szükséges szimulációkat, és magam végeztem a mechanikai tervezést. A spektrométerrel végzett mérések túlnyomó többségében is részt vettem, tehát a kalibráción túl is dolgoztam vele. A spektrométer tervezéséről tudományos folyóiratban nem jelent meg közlemény. Erről az Atomki Annual Reportban [156] számoltam be, valamint egy nemzetközi konferencián mutattam be egy posztert [157].

#### 4.3 A kapillárisok ionterelésének vizsgálata

Az irodalmi áttekintésből látható, hogy a kapillárisok ionterelésének kísérleti vizsgálata viszonylag könnyen ad eredményeket, ha új anyagokat, mintákat akarunk kipróbálni, de a szisztematikus vizsgálatok nem egyszerűek. Azt, hogy hogyan alakul ki és megy végbe az önszerveződő folyamat, nagyon kevés ismert és mérhető mennyiségből kellene megértenünk.

Ismert mennyiségek például a kapillárisok anyaga, geometriai mérete, átlagos sűrűségük a mintában, a kapillárisok tengelyeinek egymáshoz képesti szögszórása, a kapillárisoknak a nyalábirányhoz képest tekintett dőlésszöge. Ismerjük a lövedékként használt ionok bizonyos tulajdonságait is, melyek például a töltésállapot, az energia, vagy, hogy milyen a részecskék nyalábjának széttartása.

Mérhető mennyiség például a bemenő áram, amelyre a méréseket normálhatjuk. Mérhetjük továbbá a kapillárisokon átjutott részecskék számát és tulajdonságait. A meghatározott töltésállapotú átvitt részecskék számlálásával a legfontosabb mennyiséget, a minta átvitelét határozzuk meg. Általában döntően az eredeti és a semlegesítődött töltésállapot van jelen az átvitt részecskék között. Tudjuk mérni az átvitt ionok energia és szögeloszlását. Alkalmas detektorral ugyanezeket meg tudjuk határozni a semlegesítődött részecskékre is.

Megfigyelhetjük az átvitt részecskék kilépési irányának időbeli változásait, melyek a kapillárison belüli töltésfoltok kialakulásáról adnak információt. Tanulmányozni tudjuk a nyaláb kikapcsolását követően az átvitel csökkenését. Ezt rövid tesztimpulzusokkal kell vizsgálnunk, hogy ne töltsük fel újra a falat, mely meghamisítaná a mérési eredményt.

Ugyanakkor a kapillárisok belső falának felületéről semmilyen információ nem áll rendelkezésünkre. Pedig az, hogy az önszerveződő folyamat hogyan alakul ki, hogyan megy végbe, döntően azon múlik, hogy a felület mentén hogyan mozognak a lerakott töltések. Szükségképpen mozogniuk kell, hiszen a kapillárisokba bejövő ionok árama folyamatos. Ha a kapilláris belső felületéről nem ürülnének ki a töltések, akkor az átvitel blokkolódása nagyon hamar bekövetkezne.

Ahhoz, hogy megértsük, hogy hogyan működik az önszerveződés, és hogyan alakul ki az egyensúlyi állapot, alapvető fontosságú, hogy tisztában legyünk a felületen végbemenő folyamatokkal. A kapilláris belső felületén végzett közvetlen mérésekre azonban nincs lehetőségünk. Arra, hogy ott mi történik, a mérhető mennyiségekből kell következtetnünk.

Erre irányul kutatásaink nagy része. Az a tény, hogy az ionok a legkülönbözőbb anyagi minőségű és átmérőjű kapillárisokon is képesek átjutni azt mutatja, hogy a folyamat létrejöttében lennie kell olyan tényezőnek, mely általánosan jelen van valamennyi szigetelő anyagban. Ezért keresnünk kell azokat a közös jellemzőket, melyek szükségesek és elégségesek az önszerveződő folyamat kialakulásához. A vizsgálatok célja pedig általánosan az, hogy az ionok terelődése tervezhető legyen. Természetesen továbbra is fontos, hogy újabb és újabb anyagok és elrendezések esetében vizsgáljuk meg az átvitel jellemzőit.

Szisztematikus kísérletek az elméleti modellekre, szimulációkra támaszkodva tervezhetők, és eredményeik értelmezésének igénye visszahat azok fejlődésére. Az irodalmi áttekintésben láttuk az alkalmazott szimulációs technikák képességeit és problémáit. Láttuk az irodalmi áttekintésben, hogy viszonylag könynyen számolható egy adott töltéselrendezés hatására a bejövő ion pályája. Ehhez a newtoni mozgásegyenletek megoldása szükséges. Az elméleti megközelítések nehézsége a felületen történő töltésmozgások leírásában van. Ezek fizikai modelljeit nem könnyű a szimulációkba beépíteni. Egyik ismert szimuláció sem alkalmas például a töltésvándorlás lassú komponensének leírására, pedig az ilyen kísérletek, melyekben a bemenő áramot hosszabb időre kikapcsoljuk, közelebb vihetnek a felületen zajló folyamatok megértéséhez. A szomszédos csatornákban, az egész mintában felhalmozódó töltések tere befolyásolja a kapillárisban kialakuló térerősségeket, ami az ionpályákra és a felhalmozódó töltések kiürülésére egyaránt hatással van. Ennek követésére az ismert szimulációkban nem vállalkoztak. Ezért magunk is megpróbálkoztunk egy, az eddigiektől eltérő szimulációs technikával.

Ebben az alfejezetben részletezem a kapilláriskötegek ionátvitelének vizsgálatában végzett munkámat, mely a kutatómunkám legnagyobb hányadát tette ki. Röviden ismertetem a végzett kísérleteket, az elért eredményeket részletesen tárgyalom. Külön alpontokba szedve mutatom be az egymástól elkülöníthető területeken elért eredményeket. Vizsgáltam, hogy a kapillárisok anyagának felületi vezetőképessége hogyan befolyásolja a nanokapillárisok falának töltéselrendeződését. Ezt az értelmezhetőség szempontjából egyszerűbb kép miatt a kapillárisok letöltődése közben vizsgáltam. Tanulmányoztam a nanokapillárisok elektrosztatikus elzáródásának körülményeit, valamint a bombázó energiától való függését. Témavezetőmmel kidolgoztunk egy újfajta megközelítést a kapillárisok ionterelésének szimulációjára. Végül beszámolok egy új típusú minta vizsgálatáról, a mikrométer átmérőjű, nagy rendezettségű kapilláriskötegeken áthaladó ionok viselkedéséről, mely szokatlan időfejlődést mutatott.

#### 4.3.1 A nanokapillárisok letöltődésének vizsgálata

Ezeket a kísérleteket a vezetési mechanizmusok tisztázásának érdekében végeztük. A terelési folyamat dinamikáját az határozza meg, hogy a kapilláris bejáratánál kialakuló elsődleges, valamint a kapilláris belsejében létrejövő átmeneti
töltésfoltoknak az időben hogyan alakul a feltöltődése. Az átvitel kialakulását, illetve az átvitelben beálló egyensúlyi állapot létrejöttét is a kapilláris felületén lerakódott töltések vándorlása, kiürülése vezérli. Mint az irodalmi áttekintésben láttuk, az ezt leíró elméleti modellek napjainkban egymás mellett léteznek.

Amíg a kapilláris falát a bejövő nyaláb feltölti, az alapvető folyamatok meglehetősen összetettek. Ha csak a bejárati töltésfoltot tekintjük, akkor az átvitel a bejövő, a kisütő és az átvitt áram értékétől, valamint a töltésfolt éppen aktuális töltöttségétől függ. Így a nyaláb intenzitásának változása észrevehetően befolyásolhatja a feltöltődési folyamatot, és kevésbé intenzíven akár az egyensúlyi állapotot is. Fel kell ismernünk, hogy a feltöltődési periódus alatt a bejárati töltésfolt által a kapilláris belseje felé továbbított áram nem azonos a kapillárison átvitt árammal [25, 125]. Az egyensúlyi állapot elérése után a bejárati töltésfolt fogja meghatározni az átvitelt, tehát ezután már az várható, hogy a bejárati töltésfolt által továbbított áram és a kapillárison átvitt áram egymással arányos lesz.

A helyzet egyszerűbb, ha a bejövő áramot kikapcsoljuk. Ebben az esetben az egyetlen végbemenő folyamat a töltések vándorlása a kapilláris falának felületén. Azt várjuk, hogy a leggyorsabb folyamat a fémréteg közelében fekvő bejárati töltésfolt kiürülése. A szimulációk és a stabil átvitel egyaránt azt mutatják, hogy az egyensúlyi állapot kialakulása után a kapilláris belsejében a töltések inhomogenitása és az azokat vezérlő mezők gyengék [70, 72]. Ennek megfelelően a töltés-vándorlás a kapilláris belsejében és a fémrétegek irányába várhatóan lényegesen lassabb folyamatok, mint a bejárati töltésfolt kisülése. Első közelítésben úgy tekintjük, hogy a kapilláris belsejében kialakult töltéseloszlás állandó, amelyre a bejárati foltnak semmilyen hatása nincs. Így a kisülési folyamat feltérképezhető olyan módon, hogy rövid bejövő nyalábimpulzusokkal mérjük az átvitelt. Ahogy a bejárati töltésfolt gyengül, az átvitel is csökken. Ahhoz, hogy elkerüljük a bejárati töltésfolt visszatöltését, elegendően rövid teszt impulzusokat kell használnunk.

Mint az irodalmi áttekintésben láttuk, PET mintán korábban is végeztek hasonló méréseket [128]. Az átvitel csökkenését azonban csak egy órán át mérték mindegyik dőlésszögnél. Az eredményeket a Frenkel-Poole típusú nemlineáris vezetőképesség modellel értelmezték, de a rövid mérések miatt a modell helyessége nem kapott határozott megerősítést. Meg kell még jegyezni, hogy a [128]-as kísérletben olyan mintát használtak, melyben a kapillárisok tengelyeinek szögszórása meglehetősen nagy, körülbelül 1,2° FWHM volt. További kísérletekben, melyeket sokkal párhuzamosabb kapillárisokkal végeztek, bebizonyosodott, hogy a terelési effektus fejlődésének dinamikája jelentősen függ a kapillárisok szögszórásától [25, 19]. Ugyanakkor a letöltődési dinamikát ilyen mintákon még nem vizsgálták. Ezért határoztunk úgy, hogy a letöltődési folyamat vizsgálatára szisztematikus méréseket végzünk, a terelési folyamatot irányító vezetési mechanizmus jobb megismerése céljából.

Ebben a munkában az átvitt ionok számának csökkenését vizsgáltuk. A méréséket a [128]-as munkánál lényegesen hosszabb időintervallumon végeztük. Az ilyen hosszú mérések esetén kritikus, hogy a mérés közben a kapillárisok falát ne töltsük fel újra a tesztimpulzusokkal. Ezért az impulzusok hosszát a lehető legrövidebbre választottuk. Az impulzusok hossza néhány másodperc volt, amit néhányszor megismételtünk. A tesztimpulzusokkal mért átviteleket megvizsgálva azt tapasztaltuk, hogy a kapillárisok falait nem töltjük újra.

A méréseket az Atomkiban található ECR ionforrás nyalábvégénél végeztük. A nyaláb 3 keV energiájú Ne<sup>7+</sup> ionokból állt. A tipikus nyalábáram a kísérletek alatt ~100 pA volt. A kísérleti elrendezés vázlata a 3.4-es alfejezetben található.

Két PET mintát használtunk a mérések folyamán. Mindkét fólia 12 µm vastagságú, melyekben a kapillárisok nagyon párhuzamosan helyezkedtek el (szögszórásuk kisebb volt mint 0,2° FWHM). A kapillárisok átmérője hasonló volt, míg sűrűségük nagyon eltérő. Ezeket a paramétereket pásztázó elektronmikroszkópos (SEM) felvételekből állapítottam meg. A nagyobb sűrűségű minta kapilláris átmérője 233 nm, sűrűsége pedig 10<sup>8</sup> cm<sup>-2</sup> volt. A kisebb sűrűségű minta paraméterei: átmérő 170 nm, sűrűség 5,1×10<sup>6</sup> cm<sup>-2</sup> volt. Mindkét minta estében a kapillárisok szögszórása 0,2° FWHM alatti volt.

Mindkét fólia a dubnai FLNR intézetben, 250 MeV-es kripton ionokkal lett besugározva, ezt követően pedig a berlini ISL-ben NaOH oldattal végezték el a nyomok maratását. Azért, hogy a minták felülete elektrosztatikusan ne töltődjön fel, mindkét minta mindkét oldalát egy hozzávetőlegesen 20 nm-es arany réteggel párologtattuk be. Ezeken a mintákon korábban is végeztek már kísérleteket.

Kétdimenziós átviteli profilokat vettünk fel a pozícióérzékeny detektorral. A detektor előtt elhelyezett lemezpárra adott feszültség segítségével az átvitt nyalábban el tudtuk különíteni a különböző töltésállapotú részecskéket.

A fel-, és letöltődés mérése kissé eltért egymástól. A feltöltődés folyamán az egyes profilokat 10 másodpercig vettük fel, amiből 9 s volt a valódi adatgyűjtés, 1 s pedig az adatok kimentése a számítógépre. Amíg az átvitel el nem érte az egyensúlyi állapotot, addig folytattuk ezen képek rögzítését. Ezután kezdődött el a letöltődés mérése. A nyalábot egy elektrosztatikus eltérítővel még messze a kísérleti kamra előtt kitérítettük. A letöltődés dinamikáját úgy mértük, hogy rövid nyalábimpulzusokkal mintát vettünk az átvitelből. Olyan rövid tesztimpulzusokat használtunk, amilyet csak lehetett, ugyanakkor arra is ügyelnünk kellett, hogy a mérés statisztikája is kielégítő legyen. Ezt a mintázási eljárást a következőképpen végeztük: miután az átviteli egyensúly beállt, a letöltődés mérésére egy előre beprogramozott adatgyűjtési eljárást indítottunk anélkül, hogy az ECR-ből érkező ionnyalábot lekapcsoltuk volna. Az átvitelből mintát vevő nyalábimpulzusokat az adatgyűjtéssel szinkronizáltuk. A mérés szüneteiben pedig a kitérítő elektródára feszültséget adva a nyalábot nem engedtük a kamrába. Az adatgyűjtés közben a kitérítő elektródára nem adtunk feszültséget, ilyenkor az ionnyaláb bejutott a kísérleti berendezésbe. Első lépésként az átvitt részecskéket 10 s hosszúságig mértük, amit 1 s szünet követett. Ezután az átvitelt három egymás utáni, egyenként 2 szekundumos mintavétellel teszteltük, amelyeket 1 szekundumos szünetek szakítottak meg. Az első ilyen impulzussorozatot két perc hosszúságú szünet követte, ami után jött az újabb három darab mintavételi impulzus. Ezt az eljárást ismételgettük úgy, hogy a mintavételi impulzussorozatok közötti szüneteket egyre növeltük addig, míg az átvitel alig mérhető szintre csökkent. A három egymás utáni mintavételezési impulzusra azért volt szükség, hogy meggyőződhessünk arról, hogy az átvitel ezen impulzusok következtében emelkedő tendenciát mutat-e, vagy sem. Az emelkedő tendencia azt mutatná, hogy a kapillárisok falai újra feltöltődnek. Azt találtuk, hogy az átviteli értékek a három tesztimpulzus esetében a kísérleti bizonytalanságon belül megegyeznek. Azaz, a tesztimpulzusok alatt a kapillárisok falai nem töltődtek fel újra. A mérés nehéz és időigényes volt, csak a stabilan működő ionforrással felvett adatsorokat tekintettük felhasználhatónak.

Minden mérést a feltöltődés mérésével kezdtünk. A 4.3.1.1 ábrán az ionnyaláb átvitt hányadának időbeli fejlődését láthatjuk mind a nagysűrűségű (bal oldali oszlop), mind pedig az alacsony sűrűségű (jobb oldali oszlop) minta esetében, az egy kapillárisba eső töltés függvényében. Az egyes feltöltődési görbék elég hasonló, emelkedő tendenciát mutatnak. Néhány oszcilláció is megfigyelhető a görbéken, különösen az alacsony sűrűségű minta esetén.



**4.3.1.1 ábra:** A 3 keV energiájú Ne<sup>7+</sup> ionok átvitelének időbeli fejlődése (Q<sub>d</sub> függvényében ábrázolva) az egy kapillárisba beeső töltés függvényében. Az ábra bal oldalán a nagy sűrűségű minta, míg jobb oldalán az alacsony sűrűségű mintán mért eredményeket látjuk különböző dőlésszögeknél.

Ezek az oszcillációk jelölik a kapilláris belsejében kialakuló átmeneti, vagy másodlagos töltésfoltok kialakulását [25, 125]. Blokkolódási jelenséget nem láthatunk a görbéken. A terelési képességet jellemző *terelési szöget*, vagyis azt a szöget, aminél a minta átvitele 1/e-ad részére esik a 0°-hoz tartozó átvitelhez képest, az egyensúlyi átvitelekből határoztam meg. Ezek a nagy sűrűségű minta esetében 4,2°±0,2°, míg az alacsony sűrűségű minta esetében 4,3°±0,3°-nak adódtak.

A letöltődés mérése során, ahogyan az a 4.3.1.2 ábrán is látható, az átvitel minden esetben monoton csökkent. Látható, hogy a korábbi munkához [128] hasonlóan, a kísérletileg mért görbék fél-logaritmikus ábrázolásban eltérnek az egyenestől. Kezdetben a csökkenés gyors, az idő előrehaladtával pedig fokozatosan lassul. Ránézésre is nyilvánvaló, hogy minél nagyobb a dőlésszög, annál meredekebben indul az átvitel csökkenése. Mindez nehezen lenne magyarázható egy lineáris modell keretein belül.

A letöltődést az úgynevezett bemeneti töltésfolt modell keretében próbáltuk értelmezni. Ebben a modellben úgy tekintjük, hogy az ionterelést egyetlen töltésfolt végzi, amelyet a bejövő áram tölt, a határoló aranyréteg felé irányuló kisütő áram süt ki, és terelőképessége a feszültségétől függ. A *Q* töltés és az *U* feszültség közötti kapcsolatot egy *C* effektív kapacitás írja le.



**4.3.1.2 ábra:** A Ne<sup>7+</sup> ionok átvitele a letöltődési idő függvényében, miután a nyalábot kikapcsoltuk. A szimbólumok a kísérleti adatokat, míg a folytonos vonalak a Frenkel-Pooleféle nemlineáris modell alkalmazásával számolt elméleti görbéket jelölik.

Ebben a modellben a bemeneti folt feltöltődésére az alábbi differenciálegyenlet írható fel:

$$\frac{dQ}{dt} = J_{in} - J_p - J_{dis}, \tag{4.3.1.1}$$

a letöltődésére pedig

$$\frac{dQ(t)}{dt} = -J_{dis}.$$
 (4.3.1.2)

Itt a  $J_p$  jelöli a bejárati töltésfolt által továbbított áramot, a  $J_{dis}$  pedig a töltésfoltot kisütő áramot.

A töltés és az  $f=J_p/J_{in}$  átvitel közötti kapcsolatot egy korában bevezetett formulával [128, 122] közelítettük:

$$f(Q) = f_{\infty} e^{-Q_m/Q}, \qquad (4.3.1.3)$$

ahol  $f_{\infty}>f$  a maximális átvitel,  $Q_m$  pedig egy karakterisztikus töltés, mely a bejárati töltésfoltban egyensúlyi átvitel esetén kialakuló töltéssel arányos. Látnunk kell, hogy Q értéke nem növekszik az egyensúlyi töltés fölé. Ez az egyenlet azt a kísérleti megfigyelést adja vissza, miszerint az átvitel megindulásához bizonyos menynyiségű töltés összegyűjtése szükséges (küszöb effektus), valamint véges átviteli értéket ad Q-nak bármilyen pozitív értékére.

A 4.3.1.2 ábráról világosan látható, hogy a kísérleti adatokat lehetetlen megilleszteni a lineáris vezetőképességi modellel, hiszen a pontoknak akkor egy

egyenes vonalat kellene kirajzolniuk a féllogaritmikus ábrázolásban. Ezért a következő vizsgálatban a Frenkel-Poole típusú vezetőképességi modellt alkalmazzuk. A kisütő áramot a (2.5.5.3) formulával írjuk le:

$$J_{dis} = \frac{Q(t)}{\tau} \exp\left(\sqrt{\frac{Q(t)}{Q_c}}\right)$$
(4.3.1.4)

ahol  $\tau$  a kis Q értékekhez tartozó letöltődés időállandója, amikor az exponenciális tag értéke egyhez közeli. Ezt az esetet az ohmikus vezetés régiójának nevezzük. A másik paraméter,  $Q_c$  egy karakterisztikus töltés a nemlineáris tagban. A töltések arányát elektrosztatikus térerősségek arányából származtathatjuk,  $Q/Q_c = E/E_c$  [122, 136]. A 4.3.1.2 ábrán látható folytonos vonallal jelölt görbéket a (4.3.1.2), (4.3.1.3) és a (4.3.1.4) egyenletek alapján származtattuk.

Ahhoz, hogy a bejárati töltésfolt töltésének időfejlődését modellezni tudjuk, rekurzióval oldjuk meg az (4.3.1.1) egyenletet Q(0)=0 kezdeti feltétellel. A rekurziós formula:

$$Q_i = Q_{i-1} + Q_{ins,i} - \Delta Q_{p,i} - J_{dis}(Q_{i-1})\Delta t$$
(4.3.1.4)

Itt  $Q_{i-1}$  az előző képkocka felvétele után a bemeneti töltésfoltban kialakult töltés,  $Q_{ins,i}$  az adott képkocka alatt beérkező töltés (mért mennyiség),  $\Delta Q_{p,i}$  az adott képkocka alatt a kapillárison átvitt töltés (mért mennyiség),  $J_{dis}$ -t, pedig minden lépésben a (4.3.1.4) egyenlet alapján számítjuk ki a Frenkel-Poole vezetőképességi modell keretein belül. A rekurziós eljárás numerikus kapcsolatot eredményez a mért átviteli értékek és a bejárati töltésfolt töltése között.

Ezek a lépések láthatók az 4.3.1.3 ábrán a nagysűrűségű minta  $\Psi$ =5,7° dőlésszöge esetében. Az ábra a) részében a bejárati töltésfoltban lerakódott töltés az egy kapillárisba beeső töltés függvényében,  $Q(Q_{in})$ , látható, amit a (4.3.1.1) egyenlet alapján számítottunk ki. Megjegyzem, hogy ahhoz, hogy az (4.3.1.1) egyenletet megoldhassuk, kezdőértékeket kell megadnunk a (4.3.1.4) egyenletben található  $\tau$  és és  $Q_c$  paraméterekre. Ezeknek a végső értékét iterációval határoztuk meg, a 4.3.1.3 a) ábrán látható görbe ezen végső értékekkel lett számolva. A numerikus  $Q(Q_{in})$  függvényből és a (4.3.1.3) egyenletből meghatározható a  $f(Q(Q_{in}))$  függvény, amely jól illeszkedik mind a kezdeti, mind pedig az egyensúlyi állapotban mért adatokra (4.3.1.3 b) része). Ezzel a módszerrel meghatároztuk a letöltődési szakasz kezdeti feltételét, a Q töltés induló értékét is.



**4.3.1.3 ábra:** A feltöltődési folyamat analízise a nagy sűrűségű PET minta  $\Psi$ =5,7° dőlésszögének esetében. Az a) részen a felhalmozott töltés Q, amit az (4.3.1.1) egyenlet alapján számoltunk az egy kapillárisba bejutott össztöltés, Q<sub>in</sub> függvényében. A b) részen pedig a szimbólumok a mért átvitelt jelölik szintén az egy kapillárisba bejutott össztöltés függvényében, a vonal pedig az f(Q(Qin)) függvény illesztett görbéje.

A feltöltődési folyamat legelején a kisütő és az átvitt áram elhanyagolható. Ebben a régióban a lerakódott töltés *Q* közel azonos a bemenő töltéssel *Q*<sub>in</sub>. De a görbe hamarabb megy telítésbe, még mielőtt az átvitel elérné az egyensúlyi állapotot. Ennek oka a nemlineáris vezetőképesség lehet.

A 4.3.1.3 ábra b) részében az  $f(Q(Q_{in}))$  függvény paramétereit úgy választottuk meg, hogy helyesen adják vissza mind a kezdeti, mind pedig az egyensúlyi átvitelt. Az ezek közötti részben a feltöltődési folyamat nagyon összetett. Ennek oka főként az időleges töltéslerakás a kapilláris belsejében [38, 125], így az eltérésék a mért átvitel és az illesztett görbe között elkerülhetetlenül megjelennek.

A fel- és letöltődési adatokon alapuló teljes iterációs eljárás a  $Q_c$  és a  $\tau$  paraméterpár kezdő értékeinek megadásával indul. A következő lépésben kiszámítjuk a félempirikus  $Q(Q_{in})$  függvényt és a feltöltődéskor mért átvitelre illesztve megkeressük az f(Q) függvény paramétereit. Végül a (4.3.1.2) egyenlettel és f(Q)val kiszámítjuk a csökkenő átvitelt f(t) a kisülési idő függvényében. Ha ez a számolt görbe nem követi a mért átviteli értékeket, akkor a  $Q_c$  és a  $\tau$  paraméterek értékeit módosítjuk és az egész eljárást kezdjük elölről. Ezt addig folytatjuk, míg kielégítő illeszkedést nem kapunk a mért letöltődési és számolt adatok között.

Ennek az eljárásnak az eredményét mutatja a 4.3.1.2-es (letöltődés) ábra a kísérletileg mért adatokkal összehasonlítva. Általánosságban jó egyezést láthatunk a kísérleti adatok és a nemlineáris vezetőképességi modell alapján számolt adatok között, mindkét minta esetében, az összes vizsgált dőlésszögnél. A fenti eljárás során kapott paramétereket összegezi a 4.3.1.1-es táblázat.

| Sample | ψ (°) | τ (10 <sup>5</sup> s) | <i>Q<sub>c</sub></i> (fC) | <i>Q<sub>m</sub></i> (fC) | f∞    |
|--------|-------|-----------------------|---------------------------|---------------------------|-------|
| HD     | 3.1   | 7.49                  | 0.126                     | 1.65                      | 0.426 |
| HD     | 5.7   | 11.45                 | 0.126                     | 8.10                      | 0.339 |
| HD     | 8.9   | 11.68                 | 0.126                     | 10.77                     | 0.013 |
| LD     | 2.1   | 5.41                  | 0.126                     | 1.70                      | 0.131 |
| LD     | 3.3   | 5.40                  | 0.126                     | 4.25                      | 0.165 |

**4.3.1.1 táblázat:** a kapott illesztési paraméterek a kisütő áramra ( $\tau$ ,  $Q_c$ ) és az átviteli függvényre ( $Q_m$ ,  $f_{\infty}$ ).

A táblázatból látható, hogy a  $Q_c$  paraméterre mindig ugyanazt az értéket használtuk. A különböző dőlésszöghöz tartozó adatok független illesztése majdnem ugyanazt a  $Q_c$  értéket adta mindkét mintára. Ezért úgy határoztunk, hogy konstans  $Q_c$  értéket használunk minden esetben, ami ugyanolyan jó egyezést eredményezett. Így sikerült a szabad paraméterek számát csökkentenünk.

A  $\tau$  időállandó az alacsony térerősségek esetében (az ohmikus tartományban) nem nagyon változik. De ezek a változások a bejárati töltésfolt geometriája változásának következtében felléphetnek. A töltésfolt geometriája a dőlésszög változtatásával módosulhat. Ugyanakkor különböző anyagi tulajdonságok is szerepet játszhatnak. A  $\tau$  paraméter a dőlésszög növelésével szintén nő és úgy tűnik, hogy a nagy szögeknél konstanshoz közelít. A  $Q_m$  paraméter az átvitel jellemzője. Ez is növekszik a növekvő dőlésszöggel, és a két különböző minta esetében hasonló értéket vesz fel a legkisebb szögeknél. Minden esetben az  $f_{\infty}$  értékei sokkal nagyobbak, mint a megfelelő, mért f átvitelek.

Összefoglalva ezt az alfejezetet: A PET mintában kialakított nanokapillárisokon áthaladt 3 keV energiájú Ne<sup>7+</sup> ionok időfejlődését vizsgáltuk két különböző mintán mind a feltöltődési, mind pedig a letöltődési periódusban. A két mintára a kapillárisok átmérője közel azonos volt, míg a kapilláris-sűrűségek nagyon eltérőek. A letöltődés folyamán az átvitt ionintenzitás az eltelt idővel folyamatosan, monoton csökkent. Ugyanakkor a megfigyelt csökkenés eltér az exponenciálistól, az átmeneti időállandó az idővel fokozatosan nőtt. Ez teljességgel eltér bármilyen lineáris modell keretében tárgyalható viselkedéstől. A letöltődési folyamat időfüggését a nemlineáris Frenkel-Poole vezetőképességi modellel magyaráztuk. A modell alkalmazásával elvégzett számítások jó egyezést mutattak a kísérletileg mért átviteli értékekkel. A Frenkel-Poole formulában szereplő töltés-paraméter, ami a kritikus térerősséggel van kapcsolatban állandónak adódott az összes mért dőlésszögnél mindkét mintára. A modellszámításokból kapott vezetőképességi paraméter a dőlésszögtől alig függ. Összességében megmutattuk, hogy a nemlineáris Frenkel-Poole modell jól használható a különböző dőlésszögek és kapillárissűrűségek esetében is, ha a vezetőképességi paraméter nem sokat változik.

A kísérleti munkák során a mérések előkészítésében és végzésében jelentős részt (saját részem a teljes munka kb. 50 %-a) vállaltam. A mért adatok kiértékelését én végeztem. Részt vettem az eredmények értelmezéséről folytatott vitákban, valamint a modell felállításában és finomításában. Ezen kísérletek eredményeiből született egy (jelenleg elbírálás alatt álló) tudományos közlemény, melynek második társszerzője vagyok [131].

## 4.3.2 Nanokapillárisok elektrosztatikus elzáródása

Az irodalmi áttekintésben láttuk, hogy kevés kivételtől eltekintve az átvitel a megdöntött kapillárisokban a nyaláb bekapcsolását követően hamarosan növekedni kezd, majd elér egy egyensúlyi értéket, ahol stabilizálódik. Láttuk azt is, hogy néhány polikarbonát minta esetén a kezdeti növekedést az átvitel csökkenése, több esetben teljes megszűnése követte [32, 46, 122].

A jelenség vizsgálatába kezdettől bekapcsolódtunk [46]. Méréseinket az Atomki ECR ionforrásából érkező 3 keV energiájú Ar<sup>7+</sup> ionok nyalábjával végeztük. A nyalábáram tipikus értéke 100 pA körül volt. A vizsgált minta egy kereskedelmi forgalomban megvásárolható baktériumszűrő fólia volt. A fóliában lévő kapillárisokat nehézion besugárzást követő maratással állították elő, az általánosan alkalmazott mintakészítési módszerrel. Az így preparált fóliában a kapillárisok sűrűségeloszlása véletlenszerű. A fólia vastagsága, azaz a kapillárisok hossza 30 µm, míg az átmérőjük 170 nm volt. A minta geometriai átlátszósága 9,5 %, ezt pásztázó elektronmikroszkópos felvételek elemzése útján határoztam meg. A képek elemzéséből meghatároztam a mintában elhelyezkedő kapillárisok sűrűségét is, ez 4,2 × 10<sup>8</sup> cm<sup>-2</sup>-nek adódott. A kapillárisok hossztengelyeinek szögszórását pásztázó- ionmikroszkópiával (Scanning Transmission Ion Microscopy, STIM) határozták meg [78]. A mérések a szögszórásra a  $\Phi_a$ =0,95° FWHM értéket adták. Ez



**4.3.2.1 ábra:** A polikarbonát mintán átvitt  $Ar^{7+}$  (az ábrák (a) részei) és semleges Ar atomok (az ábrák (b) részei) a minta felületére lerakódott töltés ( $Q_d$ ) függvényében. A dőlésszög a bal oldali oszlop esetén  $\Psi=1^\circ$ , míg a jobb oldalinál  $\Psi=5,5^\circ$ .

majd háromszorosa a kiszámolt geometriai átviteli határszögnek (a hossz-átmérő arányból származtatott szög), amely  $\Phi_g$ =0,32°. Ennél a mintánál is, ahogy mindegyiknél a minta elő- és hátlapja egy körülbelül 20 nm vastagságú, porlasztott arany réteggel lett bevonva a nemkívánatos feltöltődési effektusok kiküszöbölésének érdekében.

A mérési eljárás az előző alfejezetben leírttal azonos volt. A kísérlet folyamán az átvitt nyalábban előforduló töltésállapotokat egy arra alkalmas elektrosztatikus térrel a detektor előtt szétválasztottuk. Az eredeti q=+7 és a q=0 töltésállapoton kívül a kettő közötti töltésállapotok jelentős átvitelét nem tapasztaltuk.

A mért adatokat kiértékelve a 4.3.2.1 ábrán látható görbéket kaptuk. Az ábra bal oldali oszlopában a  $\Psi$ =1°, míg a jobboldali oszlop esetében  $\Psi$ =5.5° dőlésszögnél mért eredményeket láthatjuk. Első látásra szembetűnik, hogy a legkisebb szögnél (bal oldali oszlop) az ionátvitel azonnal megindul, ahogy a nyaláb a minta felületét éri. Ezt a kapillárisok viszonylag nagy szögszórásával magyarázhatjuk. Ennél a mintabeállításnál mindig lesz néhány kapilláris, ami a bejövő ionnyalábbal párhuzamosan áll, így azonnal átvezet. A nagyobb szögek esetében (jobb oldali oszlop, (a) panel) a küszöbjelenség jól megfigyelhető. Az átvitel itt csak egy bizonyos lerakódott töltés érték elérése után indul meg. Az ionátvitel kezdetben mindkét dőlési szögnél gyorsan emelkedik, majd elér egy maximális értéket, ezután esni kezd, végül részleges blokkolódás alakul ki. Ebben a kísérletben sikerült minden dőlésszögnél megfigyelni a kezdeti, emelkedő szakaszt, ez volt az első kísérlet, melyben a blokkolódás kialakulásának részleteit fel tudtuk térképezni. Egy egyszerűbb modellfüggvényt is megadtunk, amivel a mért adatokat le tudtuk írni:

$$f(Q_d) = \begin{cases} 0, & ha \ Q_d < Q_s \\ f_0 \left( 1 - \exp\left[ -\frac{Q_d - Q_s}{Q_c} \right] \right) \left( \exp\left[ -\frac{Q_d - Q_s}{Q_b} \right] + K \right), & Q_d > Q_s \end{cases}$$
(4.3.2.1)

Itt a Q<sub>s</sub> egy küszöbérték, ami a nagyobb szögeknél látható átvitel megindulásának késését adja meg. Az első zárójelben található rész írja le a felfutási szakaszt (ezt már korábban is használták [19, 91]). A Q<sub>c</sub> pedig egy karakterisztikus töltés-paraméter. A második zárójeles tag írja le a blokkolódást. Ez egy exponenciálisan csökkenő függvény, amelyben szintén van egy Q<sub>b</sub> karakterisztikus töltés-paraméter, valamint az előző tagban is szereplő Q<sub>s</sub> késleltetés. Mivel az ábrákból látható, hogy az átvitt intenzitások nem nullához, hanem egy attól valamivel nagyobb konstans értékhez tartanak, a lecsengési tényezőhöz egy konstans K értéket is hozzá kellett adnunk. Ennek a függvénynek a legjobb illeszkedései láthatók a 4.3.2.1 ábrán kék szaggatott vonallal. Az illesztett görbék kvalitatívan jól leírják a kísérleti adatokat, ugyanakkor eltérések is láthatók, amelyek leginkább az ábra jobb oldali oszlopában, a  $\Psi$ =5,5° dőlésszögnél szembetűnőek. Azért, hogy megbízható töltés-konstansokat tudjunk megállapítani, a lecsengő részeket külön is megillesztettük egyszerű exponenciálisan csökkenő görbékkel. Ezeket az illesztett görbéket láthatjuk a 4.3.2.1 ábrán piros vonallal. A kapott töltés-paramétereket az ábrába írtuk. Megfigyelhető, hogy a nagyobb dőlésszöghöz lényegesen nagyobb érték ( $Q_b$ =49 nC) tartozik, mint a  $\Psi$ =1° dőlésszöghöz ( $Q_b$ =21 nC) tartozó görbe esetében. Ez arra utal, hogy a kis dőlésszögek esetében, amikor a kapilláris blokkolódása gyorsabb, nagyobb töltésmennyiség halmozódik fel.

Az ionok időbeli fejlődését összehasonlítottuk a semlegesítődött részecskék hozamának időbeli fejlődésével (4.3.2.1 ábra (b) részei). Általánosságban elmondható, hogy a viselkedés dinamikája az ionokéhoz hasonló. Az átvitelek a kezdeti gyors emelkedés után a maximális értéket elérve erős csökkenésbe kezdenek. A maximumok az ionátvitelek maximumával szinkronban következnek. Lényeges különbség azonban, hogy semleges részecskék átvitele már akkor is látható, mikor ionátvitel még nem tapasztalható (jellemzően a nagyobb szögeknél). Megfigyelhető továbbá, hogy az hosszú idő után kialakuló intenzitások a semleges részecskék esetében a maximumhoz viszonyítva nagyobbak, mint az ionok esetében. Az illesztéssel meghatározott karakterisztikus töltés-konstansok semleges részecskékre a  $\Psi$ =1° dőlésszögnél az ionoknál kapott konstanssal közel azonos ( $Q_b$ =21 nC), míg a nagyobb dőlésszögeknél lényegesen eltérnek attól. Ez arra utal, hogy a nyilvánvaló hasonlóságok ellenére eltérések vannak az ion- és semleges-átvitelek dinamikájában.

Ebben a munkában [46] sikerült megmutatnunk, hogy több polikarbonát mintában is kialakulhat az ionátvitel részleges blokkolódása, és megállapítottuk, hogy ennek mértéke függ a minta dőlésszögétől. Kérdéses volt, hogy a hasonló geometriai és elektrosztatikai tulajdonságokkal rendelkező PET kapilláris minták többsége esetén, azonos ionenergiánál miért nem történik ilyen blokkolódás. Ez valószínűleg a vezetőképességek, illetve a vezetési mechanizmusok különbözőségének tudható be, de ezt igen nehéz vizsgálni. Célszerű lett volna közvetlenül megmérni a kapillárisok falának vezetőképességét, illetve annak térerősségtől és más paraméterektől való függését. Nanokapillárisok esetében azonban nincs lehetőségünk a kapillárisok belső felületén megmérni a felületi vezetőképességet, hiszen a nanométeres átmérőjű görbült felületen ez nem lehetséges. A gyártók által makroszkopikus anyagmintákra megadott értékek nem feltétlenül helytállók kis méreteknél. Ezen túl, felületi adataik sem feltétlenül használhatók nagyvákuum körülmények között.

Egyetlen útnak a minél több mintán való, minél pontosabb mérés látszott. Következő munkánkat [160] az is motiválta, hogy egy előző kísérletben [32], ahol a kapillárisok sűrűségének hatását vizsgálták az ionok átvitelére, azt tapasztalták, hogy PET kapillárisok is blokkolódhatnak, nagyobb kapilláris sűrűségek esetén.

Mivel a kísérleti eredményeink arra mutattak, hogy a kapillárisok blokkolódásának oka a felületek preparálásával, illetve azok geometriai és elektromos tulajdonságaival van kapcsolatban, összehasonlító mérésekbe kezdtünk. Ennek során először [160] a különböző módon és helyen, de ugyanabból az anyagból (PET) előállított mintákat vizsgáltunk. Az egyik mintapárt a darmstadti GSI Helmholtz-Zentrum-ban készítették. A fóliák vastagsága 10 μm. besugárzásuk 2,2 GeV energiájú arany ionokkal történt. A besugárzás után NaOH oldatban maratták a részecskék nyomait, aminek során ~140 nm átmérőjű kapillárisok keletkeztek. A kapilláris-sűrűség az egyik minta esetén 5×10<sup>6</sup> cm<sup>-2</sup>, míg a másiknál 6×10<sup>7</sup> cm<sup>-2</sup> volt. A mérések Groningenben, a Zernike-LEIF ionforrás komplexum ECR ionforrásánál történtek.

A másik mintapárt a dubnai Flerov Laboratory of Nuclear Reaction (FLNR) intézetben készítették. Ebben az esetben a 12 µm vastagságú fóliákat 250 MeV energiájú kripton ionokkal sugározták be. A részecskék nyomának maratását a berlini Ionenstrahl-Labor-ban (ISL), szintén NaOH oldat felhasználásával végezték. Végeredményben 200 nm átmérőjű kapillárisokat kaptak,  $4 \times 10^6$  cm<sup>-2</sup> és  $1 \times 10^8$  cm<sup>-2</sup> kapilláris-sűrűséggel. Ezeket a mintákat mértük Debrecenben.

A mérés menete a már korábban részletezett volt, *10* másodperc alatt rögzítettünk egy képkockát, melyből 9 s a valódi adatgyűjtés, 1 s pedig az adatok számítógépre történő mentése. A 4.3.2.2 ábrán mutatom a  $\Psi$ =1,3° (felső sor), és a  $\Psi$ =6° (alsó sor) dőlésszögnél mért adatokat. Az MCP detektoron mért pozíciót szögkoordinátákká transzformáltam, ahogy az ábrán is látható. Minden képkocka kétszeresen differenciált szögeloszlásnak ( $dY(\theta_x, \theta_y)/d\Omega$ ) felel meg.

A  $\Psi$ =1,3° dőlésszög (felső sor) esetében látható, hogy a Ne<sup>7+</sup> ionok a besugárzás kezdetén rögtön megjelennek. Kezdetben az átviteli profil intenzitása és szélessége is kisebb, mint a többi képen. Ennek a töltéslerakódással növekvő kiszélesedésnek az oka a nyaláb divergenciája, és fókuszálási effektusok [32]. Az ábra alsó sorában a  $\Psi$ =6° dőlésszögnél mért adatokat láthatjuk. Már az első panelon látszik, hogy ennél a dőlésszögnél az ionok átvitele nem indul meg azonnal a besugárzás kezdetén. A további képeken (b-d) ugyanakkor már stabilizálódott foltokat láthatunk, amelyeknek intenzitása és szélessége is állandónak tekinthető. A kapilláris belsejében viszonylag rövid idő alatt kialakul egy olyan töltés elrendeződés, ami a kísérlet végéig stabilan meg is maradt.

A különböző mintákon mért átviteli görbék időbeli fejlődését (4.3.2.3 ábra) összehasonlítva lényeges különbségeket láthatunk.

10<sup>5</sup> 4.3.2.2 ábra: Az FLNR in-(a) 0 fC (b) 1 fC (c) 6.5 fC (d) 18 fC tézetben készült mintá- $\theta_y$  (deg) 5 10<sup>4</sup> kon áthaladt 3 keV ener-0 giájú Ne<sup>7+</sup> részecskék két-10<sup>3</sup> dimenziós képei. A felső -4 -2 Ó 2 -2 Ó 2 -4 -2 Ó 2 -4 -2 0 sor a  $\Psi$ =1,3°, az alsó sor a  $10^{2}$  $\Psi$ =6° dőlésszögnél felvett (a) 1.5 fC (c) 17 fC (b) 5 fC (d) 34 fC 5  $\theta_{y}$  (deg) képeket demonstrálja. A  $10^{1}$ képeken szereplő értékek az egy kapillárisba beju-100 tott össztöltést mutatják, 6 8 10 2 6 8 10 2 4 6 8 10 2 6 8 10 2 4 4 4 mielőtt az adott kép elké- $\theta_{v}$  (deg)  $\theta_{v}$  (deg)  $\theta_{v}$  (deg)  $\theta_{v}$  (deg) szült. 100 100(a) GSI PET, 140 nm 50 50  $6x10^7 \text{ cm}^{-2}, \psi = \sim 0.2^{\circ}$ GSI PET, 140 nm  $5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}, \psi = \sim 0.2^{\circ}$ 20 20 10 10Átvitt ionhányad (%) Átvitt ionhányad (%) 5 5 2 2 100 100 (b) FLNR PET, 200 nm (b) FLNR PET, 200 nm 50 50  $10^8 \text{ cm}^{-2}, \psi = 2^\circ$  $5 \times 10^{6} \text{ cm}^{-2}, \psi = 5^{\circ}$ 20 20 10 10 5 5 2 2 10 20 30 4010 20 30 40 0 Egy kapillárisba beeső töltés (fC) Egy kapillárisba beeső töltés (fC)

**4.3.2.3 ábra:** A 3 keV energiájú Ne<sup>7+</sup> ionok átvitelének időbeli fejlődése a különböző minták esetében. A paneleken megadtam a minták jellemzőit.

Mindkét GSI minta (a két felső panel) esetében jelentkezik a blokkolódás, csak annak kezdete függ a kapillárisok sűrűségétől. Az ábra jobb és baloldali részének (a) paneljait, azaz a GSI minták kisebb és nagyobb sűrűségű változatát összehasonlítva láthatjuk, hogy a nagyobb sűrűségű minta hasonló dőlésszögnél ( $\Psi$ =~0,2°) nagyon kevés töltésbevitel után nagymértékben blokkolódik. Ennek alapján azt mondhatjuk, hogy a GSI minta esetében a blokkolódásban a kapillárisok sűrűségének van jelentős hatása. Ugyanakkor az FLNR kapillárisok esetében stabil átvitelt mértünk minden esetben. Szembeötlő, hogy a nagyobb sűrűségű FLNR minta kapilláris-sűrűsége nagyobb a GSI mintáénál, ebben az esetben mégsem látható semmi jele a kapillárisok elektrosztatikus elzáródásának. Ezt nem okozhatja a kapilláris átmérők kismértékű eltérése, hiszen korábban 100 nm átmérőjű PET kapilláris-mintákkal is végeztek méréseket [30] és közel ugyanezt az átviteli görbét mérték, mint a jelen mérésekben. Ugyanakkor, PC kapillárisok estében azt figyelték meg, hogy a kapillárisok dőlésszögének csökkenésével a kapillárisok blokkolódása erősödött [30]. Több dőlésszögnél is megvizsgáltuk a PET mintákat, és sehol nem találtunk blokkolódást.

Mivel sem a kapillárisok átmérője, sem pedig a dőlésszögük nem okozzák a két minta esetében az ionátvitelek jelentősen eltérő viselkedését, így a különbséget annak tulajdonítottuk, hogy a GSI illetve az FLNR kapillárisfelületek vezetőképessége eltér egymástól. Erre kerestünk közvetett bizonyítékokat.

A kapillárisok felületi vezetőképességéről információt a kapillárisban létrejövő töltésfoltok kialakulásának vizsgálatából nyerhetünk. A töltésfoltok kialakulását pedig az átvitt ionnyaláb kilépési szögének változásain keresztül tudjuk vizsgálni.



4.3.2.4 ábra: A különböző mintákon átvitt ionok foltjának átlagos kilépési szöge az egy kapillárisba bejuössztöltés tott függvényében. A kapilláris-sűrűségek és a dőlésszögek minden panelen láthatók.

A 4.3.2.4 ábra (a) részében a kis sűrűségű FLNR mintán áthaladt ionok kilépési szögét látjuk. Megfigyelhető, hogy az ionok meglehetősen nagy, ±1°-os oszcillációt mutatnak. Ezek az oszcillációk mutatják meg az átmeneti töltésfoltok létrejöttét, amelyek a kapillárisok középső régióiban keletkeznek. Kis sűrűségű minták esetén ez nem mond semmit a vezetőképességről, mert a kapilláris tengelyének irányába mutató térerősség komponens kicsi, és a kialakult belső töltésfoltokból csak lassan vándorolnak el a töltések. Nagy sűrűségű mintáknál azonban a kapilláris középső régiójában nagy feszültség alakulhat ki, amely gyorsabban képes az aranyrétegek felé mozgatni a töltéseket. Persze csak akkor, ha a minta vezetőképessége elég nagy ehhez.

Valóban, a nagyobb sűrűségű FLNR minta esetében az látható, hogy a kibocsátás szöge közel állandó a kísérlet végéig, azon oszcillációkat egyáltalán nem látunk. A nagyobb sűrűségű mintán mért konstans szög arra enged követ-keztetni, hogy a bejárati folton kívüli, másodlagos töltésfoltok hiányoznak a kapillárisból, vagy gyorsan eltűnnek. Ez pedig arra utal, hogy a felületi töltésván-dorlásnak itt nagyobb szerepe lehet. Az ábra (c) részében a GSI hasonlóan nagy sűrűségű mintáján áthaladó ionok kilépési szögét látjuk. A (b) panelhez képest itt sokkal kifejezettebb oszcillációt figyelhetünk meg. Ez arra utal, hogy itt a felületi töltéskiürülés gyengébb, lassúbb folyamat, így a másodlagos foltok kialakulhatnak és hosszabban fennmaradhatnak a kapillárisok belsejében. A GSI mintában a töltésvándorlás gyengébbnek mutatkozik, ami kisebb vezetőképességre utal.

Ezzel a vizsgálattal [160] azt mutattuk meg, hogy a blokkolódás kialakulása a különböző PET mintáknál nem függ sem a kapillárisok átmérőjétől, sem a kapillárissűrűségtől, sem pedig a dőlésszögtől. Megmutattuk, hogy a nagy kapilláris-sűrűségű minták esetében sem általános a blokkolódás nemkívánatos jelensége, és valószínűsítettük, hogy az átvitel stabil mivoltának kifejlődése a PET anyagának vezetőképességén múlik.

Ennek a munkának [160] egyenes folytatásaként részletesebben vizsgáltuk a vezetőképességnek a kapillárisban létrejövő töltésfoltok kialakulására gyakorolt hatását kísérleti és elméleti módszerekkel is [161]. A kísérletileg mért adatokat szimulációk eredményeivel is összehasonlítottuk. A szimulációkat a kapillárisok felületének vezetőképességét variálva futtattuk, és új méréseket is végeztünk. A szimulációk azt mutatták, hogy azonos ionokat, mintát és dőlési szöget feltételezve (4,5 keV, Ar<sup>7+</sup>, PET, 2°), kis tömbi vezetőképességnél (1,45×10<sup>-16</sup> S/cm) nagy amplitúdójú (±1°) szögoszcillációk jelentkeznek az átlagos ionkilépési szögben, a vezetőképesség nagy értékénél (24,6×10<sup>-16</sup> S/cm) pedig semmiféle szögoszcilláció nem jelentkezett.

A kísérleteket az Atomkiban végeztük. Ebben a kísérletben is PET céltárgyat vizsgáltunk. A 10  $\mu$ m vastag fóliában kialakított kapillárisok átmérője 200 nm, a kapillárisok sűrűsége pedig 1×10<sup>8</sup> cm<sup>-2</sup> volt. Ezt a mintát is a dubnai FLNR intézetben sugározták be 250 MeV energiájú kripton ionokkal, majd a berlini ISL-ben végezték a nyomok maratását NaOH oldatban. Az ionátvitel hatásfokát mértük a nyalábirányhoz mért dőlésszög és a kapillárisba beeső integrált töltés függvényében. Az új eredményeket korábbi kísérletekben mért PC minta átvitelével összevetve is vizsgáltuk. Ez a PC minta a darmstadti GSI-ben készült, 2,2 GeV-es arany ionokkal sugározták be, majd maratták. A kapillárisok átmérője 165 nm, sűrűségük pedig 6×10<sup>7</sup> cm<sup>-2</sup>.

Az 4.3.2.5 ábrán a jelen kísérlet eredményeit hasonlítottuk össze az előző [30] eredményeivel. A PC kapillárisoknál, melyeket különböző dőlésszögnél vizsgáltak, 5° dőlésszögnél is részleges blokkolódás alakult ki. Ezt az ábra (a) részén láthatjuk. A 4.3.2.5 ábra (b) és (c) részén a PET kapillárisokon mért eredményeket látjuk. A legszembetűnőbb különbség, hogy itt az átvitel a kezdeti emelkedés után végig stabil, illetve enyhén emelkedő maradt. Nem látható nyoma a kapillárisok elzáródásának még a PC mintáénál nagyobb kapilláris-sűrűség (10<sup>8</sup> cm<sup>-2</sup>) ellenére sem. Ahogyan az a 4.3.2.5 ábra (b) és (c) részéből látható, jelentős eltérést a viselkedésben nem tapasztaltunk, különböző dőlésszögek esetében sem. Az ionok átlagos kilépési szögének oszcillációjában viszont jelentős különbség mutatkozik a minták között (4.3.2.6 ábra).



**4.3.2.5 ábra:** A 3 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionok polimer fóliákon átvitt ionhányada az egy kapillárisba beeső össztöltés függvényében. Az ábra (a) részén a PC minta eredménye látható [30]. A (b) és (c) részben pedig a PET minta eredményeit ábrázoltam. A dőlésszög minden esetben 5° körüli.



**4.3.2.6 ábra:** A polimer fóliákon átvitt Ne<sup>7+</sup> ionok átlagos szöge. Az ábra (a) része a PC minta esetét, míg (b) és (c) része a PET minta eredményeit mutatja különböző dőlésszögeknél.

A 4.3.2.6 ábrán látható, hogy a PC minta esetében (az ábra (a) része) jelentős,  $\pm 1^{\circ}$ -ot is meghaladó oszcillációk vannak az átviteli szögben. Ezek amplitúdója öszszemérhető a kis vezetőképességű szimulációban kapottal. Az ábra (b) és (c) részén, ahol a PET minták eredményeit látjuk, a töltésbevitel legelején láthatunk némi változást, míg a töltésbevitel további részében közel állandó átlagos kilépési szöget figyelhetünk meg. A kis eltérést a töltésbevitel elején a kapilláris bejáratának közvetlen közelében kialakuló töltésfolt létrejöttéhez társíthatjuk. A kapillárisokon átvitt ionok kezdetben a kapilláris tengelye mentén, annak szögében lépnek ki. Később, ahogy a bejárati töltésfolt növekszik, az ionok a központi szögtől némiképp nagyobb szögben szóródnak, ami a maximumot jelenti az ábrán a 2-5 fC-os egy kapillárisba eső töltés tartományban. Az ezt követő, szinte állandó átviteli szög arra enged következtetni, hogy másodlagos töltésfoltok a kapillárisokban nem alakulnak ki, vagy annyira gyengék, hogy hatásuk nem jelenik meg az átviteli szögben.

A két munka [160,161] összefoglalásaként elmondhatjuk, hogy sem a kapillárisok átmérője, sem a sűrűsége, sem azok dőlésszöge nem felelős a két minta átvitele között látható jelentős eltérésekért. Az oszcillációk erőssége viszont határozottan korrelál a blokkolódással, a blokkolódás nagy amplitúdójú szög-oszcillációk esetén lép fel. Ez azt sugallja, hogy a blokkolódás elsősorban a kis vezetőképesség értékű minták esetén jelentkező effektus. Ezt a szimulációk is megerősítették. Elemzésünk azt mutatja, hogy a kapillárisok elzáródása nem általános jelenség a nagy kapilláris-sűrűségű minták esetében. Így létezik olyan kapilláris minta készítésére alkalmas anyag, mely a terelt ionok hosszútávú, stabil átvitelét képes biztosítani.

Megállapítottuk azt is, hogy a blokkolódás a nagy kapilláris-sűrűségű minták esetében könnyebben, de nem szükségszerűen alakul ki. Az ionátvitelt ugyanis befolyásolja a szomszédos kapillárisokban lerakódott töltés. Elemzésünk azt mutatja, hogy a PET kapillárisok vezetőképessége jobb, mint a PC kapillárisoké. A PET [158] és PC [159] gyártói adatlapjai szerint a felületi vezetőképességük azonos, közel 10<sup>-16</sup> S. Ugyanakkor az anyag tulajdonságait a szennyeződések és a felületek kialakításának folyamata befolyásolhatják, aminek során víz kerülhet a felületekre. PET-re megmutatták, hogy a felületi vezetőképesség négy nagyságrenddel növekszik, ha a levegő relatív páratartalma 30 %-ról 80 %-ra emelkedik [158]. Emellett a PET víz abszorpciós együtthatója sokkal nagyobb, mint a PC együtthatója [158, 159]. Ez magyarázhatja a bizonyítottan nagyobb vezetőképességet a jelen munkában használt PET minta esetében. Megjegyezzük, hogy Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mintákon végzett mérések szerint vákuumban a víz deabszorpciója a szigetelők felületi vezetőképességét nagyságrendekkel képes csökkenteni [166].

A kísérleti munkák során a mérések előkészítésében és végzésében jelentős részt (saját részem a teljes munka kb. 50 %-a) vállaltam. A Debrecenben mért adatok kiértékelését én végeztem. Részt vettem az eredmények értelmezéséről folytatott vitákban. Ezen kísérletek eredményeiből született három tudományos közlemény, melyeknek társszerzője vagyok [46, 160, 161]).

## 4.3.3 Az átvitel energiafüggésének vizsgálata blokkolódó mintáknál

A blokkolódással kapcsolatos, az előző alfejezetben ismertetett vizsgálatok nem terjedtek ki arra, hogy hogyan függ a kapillárisok ionátvitele a besugárzó ionok energiájától. Ez pedig, mivel a blokkolódás a kialakuló feszültségektől függő jelenség, értékes információt adhat a jobb megértéshez. A fentiekben láttuk, hogy 3 keV-es Ne<sup>7+</sup> ionoknál, PC mintákon az átvitel blokkolódása általános jelenség. Az irodalomban ugyanakkor található olyan munka [44], amelyben nagy energiájú (10, 20, 50 keV) Ne<sup>7+</sup> ionok átvitelét illetve terelődését vizsgálták PC mintában kialakított kapillárisokon, és ott nem tapasztaltak blokkolódást. Ezért azt a stratégiát választottam, hogy az átvitel energiafüggését a 3 keV fölötti tartományban úgy vizsgálom, hogy a lépésközök a lövedékenergiák között sokkal kisebbek legyenek.

A kísérleteket az Atomki ECR ionforrásának nyalábvégén folytattuk le. Lövedékként most is <sup>22</sup>Ne<sup>7+</sup> ionokat használtunk. Az ionenergiák a 3-6 keV tartományba estek (3; 4,25; 4,5; 5 és 6 keV). A mérési geometria a kapilláris mérésekben megszokott volt, a bejövő ionnyalábot 0,5 mm átmérőre kollimáltuk még a kísérleti kamrába lépés előtt. A kollimátorokkal a nyaláb divergenciáját 0,2° FWHM-re csökkentettük. A tipikus nyalábáram a néhány száz pikoAmperes tartományon belül volt. A kísérleti kamrában az alapnyomás ~8×10<sup>-7</sup> mbar volt.

A céltárgy, hasonlóan egy korábbi mérésünkhöz [46], kereskedelmi forgalomban beszerezhető polikarbonát fólia volt, amit rendeltetésszerűen baktériumszűrőként használnak. Ebben a kapillárisok eloszlása véletlenszerű, a kapillárisok tengelye merőleges a minta felületére. A fólia vastagsága 26 µm volt (profilométerrel mérve) A kapillárisok átmérőjét a gyártó ~180 nm-ben adta meg. Elektronmikroszkópos (SEM) vizsgálatunk szerint ez kissé nagyobb, 211 nm körüli volt. Ennél a mintánál is, a minta mindkét oldalát egy ~20 nm vastagságú arany réteggel párologtattuk be, a minta felületének elektrosztatikus feltöltődésének megakadályozása céljából. A kapillárisok sűrűségét is meghatároztam a SEM képek alapján, ez ~4×10<sup>8</sup> cm<sup>-2</sup>-nek adódott. A kapillárisok hossz/átmérő arányát a magállapított átmérő és a minta vastagsága alapján határozhatjuk meg, ez ~120. Ezen a mintán korábban semmilyen iontereléses mérés nem történt.

A mérést az előzőekben már ismertetett berendezéssel, kétdimenziós pozícióérzékeny detektorral végeztük, mellyel átviteli profilokat vettünk fel. Közvetlenül a detektor előtt elhelyezett eltérítő lemezpárral a kapillárisokon átvitt ionokat töltésállapot szerint szeparáltuk.

Ebben a kísérletben csak a feltöltődési periódust vizsgáltuk. Az átvitt ionok képét itt is 10 s mérési idővel vettük fel, melyből 9 s a valódi mérés, és 1 s az adatok kimentése számítógépre. A képeket addig gyűjtöttük, amíg az átvitt ionhányad értéke nem, vagy alig változott, azaz beállt az egyensúlyi állapot.

Az átvitel hasonló dőlésszögeknél, de különböző energiáknál mért kifejlődéséről ad áttekintést a 4.3.3.1 ábra. Ahogyan az ábrán feltüntettem, a méréseket hat különböző lövedékenergiánál is elvégeztük.



**4.3.3.1 ábra:** A PC mintában elhelyezkedő nanokapillárisok ionátvitelének időfejlődése a különböző lövedékenergiák esetén. Az ionenergia a 3-6 keV tartományban változik. A dőlésszögek a különböző mérések esetében közel azonosak. Alacsony lövedékenergián (3-4,25 keV) részleges blokkolódás figyelhető meg. A 4,5 keV energián mért görbe esetében a függvény monoton növekvő, ugyanakkor a kapillárisok gyenge blokkolódása még megfigyelhető. Nagy energiákon (5-6 keV) a blokkolódás jelei nem figyelhetők meg, szabályos átviteli görbék láthatók.

Igyekeztünk olyan dőlésszögeket beállítani, amelyek között nincsenek nagy különbségek, így összehasonlítható eredményeket kaptunk a különböző energiák esetében. A dőlésszögek 1°-on belül megegyeznek. A legalacsonyabb, 3 keV-es ionenergián az átvitel nagyon gyorsan és meredeken megindul. Aztán valamivel 0,2 % felett hirtelen csökkenni kezd és egy kicsi, de véges értéken (0.03%) stabilizálódik. Ez tipikusan a kapillárisok blokkolódásának megfelelő viselkedés. Az a tény, hogy az átvitel fejlődése véges értéknél stabilizálódik azt mutatja, hogy a kapillárisok csak részben blokkolódtak.

Az ionenergia 4 keV-es értékénél a kapillárisok részleges blokkolódása még mindig megfigyelhető. Ugyanakkor az egyensúlyi állapot a 3 keV-nél tapasztalhatónál jóval magasabb értéknél (~0,2 %) áll be.

A 4,5 keV-es görbe már monoton növekvőnek tekinthető. Ugyanakkor a blokkolódás apró jelei még tetten érhetők. Ilyen jel például, hogy az ion átvitel kezdeti emelkedése után hirtelen, éles fordulóval közelíti az egyensúlyi állapotot.



**4.3.3.2 ábra:** (a 4.3.3.1 ábra kezdeti részének nagyítása) A kezdeti emelkedés meredekségének csökkenése a besugárzó energia növekedésével. Ez a meredekség csökkenés azt mutatja, hogy nagyobb energiákon a kapillárisok falán több töltésnek kell lerakódnia ahhoz, hogy az átvitel meginduljon, majd időben fejlődjön.

Ez a szabályos esetekre nem jellemző, éles váll helyett egy simább görbület az általános.

A magasabb vizsgált energiákon (5 és 6 keV) a kapilláris mérésekben megszokott átviteli görbe rajzolódik ki. A kapillárisok elzáródásának jelei látszólag nem tapasztalhatók. Ám a kialakuló átvitel alacsony értéke arra figyelmeztet, hogy ezeknél is felléphet olyan részleges blokkolódás, amely a görbék menetén már nem látszik, de az átvitelt csökkenti.

Az 5 keV-hez tartozó görbe maximális értékben a 6 keV-es fölé megy, de ha újból megnézzük a dőlésszögeket, akkor láthatjuk, hogy a kisebb energiájúhoz tartozik a legkisebb vizsgált dőlésszög, míg a 6 keV-es görbéhez 0,6°-kal nagyobb. Mivel az átvitel dőlésszög függése erős lehet, ezért ebből nem lehet határozott következtetést levonni.

Ahogyan az ionok kinetikus energiáját növeljük, az átviteli görbék meredeksége egyre csökken (4.3.3.2 ábra). Ugyanakkor az átviteli maximum egyre magasabb lesz. Ennek a változásnak az az oka, hogy a nagyobb energiájú ionok eltérítéséhez erősebb tér szükséges, azaz a bemeneti töltésfoltban nagyobb töltésnek kell felhalmozódnia. Blokkolódás nélkül az ionenergia növekedésével csökkenő terelőképesség várható, a kezdeti meredekség csökkenése is ennek jeleként tekinthető. A blokkolódás miatt azonban az egyensúlyi átvitel nem követi ezt a tendenciát.

Megfigyelhető azonban a fentebb vázolt várható tendenciától egy eltérés is. A 4,25 keV energiához tartozó görbe ugyanis nem a várható viselkedést követi. Ennek a görbének a meredeksége kisebb, mint a 4,5 keV-es görbe meredeksége. Ezt az eltérést valószínűleg az okozza, hogy ehhez a 4.25 keV-es görbéhez tartozik a legnagyobb dőlésszög, és ennek megfelelően a bemeneti töltésfolt terelőképessége kisebb. Továbbá, ebben az átmeneti tartományban, ahol az átvitel egyébként is instabil, az átvitt ionhányad időbeli fejlődése még a kis dőlésszög eltérésére is ilyen érzékenyen reagál.

A következő ábrákon mutatom, hogy az egyes lövedék energiákon hogyan függ az átvitel a dőlésszögtől. Az ábra bal oldalán az ionok átvitelénél mért görbék, míg az ábra jobb oldalán a semleges részecskék átvitelének időbeli (azaz  $Q_d$  szerinti) fejlődése látható.

A 4.3.3.3 ábra mutatja a 3 keV kinetikus energiájú lövedékek esetén mért kísérleti eredményeket. Mindkét ábrán látható, hogy a kapillárisok erősen, de csak részben blokkolódnak. A legnagyobb átvitelt a  $\Psi$ =4,15° dőlésszögnél mértük. Mind a nagyobb, mind pedig a kisebb dőlésszög esetében az átvitel maximuma kisebb értéket ér el.



**4.3.3.3 ábra:** A 3 keV besugárzó energiájú <sup>22</sup>Ne<sup>7+</sup> ionok (bal oldal) és semlegesítődött Ne atomok (jobb oldal) átvitt intenzitása az egy kapillárisba beeső töltés függvényében. A különböző színű görbék a különböző dőlésszögek esetében mért eredmények. A dőlésszögeket az ábrán feltüntettem.

Hasonló viselkedést tapasztaltak már korábban R. Nakayama és munkatársai [162] egyedi, kúpos üvegkapillárisok esetében. A növekvő dőlésszöggel a maximumok helyei a nagyobb befutó töltés értékek felé tolódnak el. Ez összefügg azzal, hogy a kezdeti meredekség a dőlésszög növekedésével csökken.

A semlegesítődött részecskék görbéi hasonlók az ionokéhoz. Ugyanakkor itt a két alacsonyabb szögnél mért átvitel közel azonos értékig növekszik, míg az ionok esetében ilyen nem figyelhető meg. A semleges részecskék fontos információt hordoznak. Viselkedésük értelmezése azonban egyszerű képek alapján nehéz lenne. Ez erős motivációt jelent egy olyan szimuláció kidolgozására, amely róluk is számot tud adni.

A következő, 4.3.3.4-es ábrán mutatom be az átmeneti energiatartományban, 4,5 keV lövedékenergián mért adatokat. Itt az átviteli görbék alakja is átmeneti. Az ionok esetében (az ábra bal oldala) a legkisebb,  $\Psi$ =2,19° dőlésszögnél az intenzitás a maximum elérése után csökken, majd nagyjából konstans. A  $\Psi$ =4,25° dőlésszögnél mért görbe a szabályos átviteleknél megszokott módon indul. Azonban ~10 fC lerakott töltésnél hirtelen konstans értékre áll be. A  $\Psi$ =6,41° dőlésszögnél szabályos átviteli görbét mértünk. Az átvitel visszaesésével járó, erős blokkolódás a dőlésszög növekedésével csökken, hasonlóan a korábbi tapasztalatokhoz [30]



**4.3.3.4 ábra:** A 4,5 keV energiájú <sup>22</sup>Ne<sup>7+</sup> ionok (bal oldal) és semleges Ne atomok (jobb oldal) átvitele az egy kapillárisba eső töltés függvényében. Az ionok esetében a legkisebb vizsgált dőlésszögnél még tisztán látható a részleges (bár nem túl erős) blokkolódás. A semleges részecskék esetében még a  $\Psi$ =4,25° dőlésszögnél is látható a kapillárisok elzáródása.

A legnagyobb vizsgált lövedék energián (6 keV), ahogyan a 4.3.3.5-ös ábrán is láthatjuk, teljesen szabályos viselkedést tapasztalhatunk minden mért dőlésszög esetében. A legkisebb dőlésszögnél ( $\Psi$ =2,33°) az átvitt ionok görbéjén szemmel látható oszcillációs struktúrák jelentek meg. Ez a másodlagos töltésfoltok kialakulásának bizonyítékai. Ennél a szögnél 20 fC befutó töltés felett a kísérleti pontok nagyon szórni kezdtek. Ennek oka a nagy bejövő áram miatt megnövekedett detektor-holtidő volt. Ennek ellenére a tendencia tisztán kivehető, nem látható jele a kapillárisok elzáródásának. A  $\Psi$ =4,35° dőlésszögnél mért kísérleti adatok szabályos viselkedést mutatnak. Az átvitel maximuma természetes módon jóval a kisebb dőlésszögnél mért alatt van. Ezen a görbén már nem figyelhetők meg az oszcillációs struktúrák. A legnagyobb tanulmányozott dőlésszögnél hasonló megfigyeléseket tudunk tenni, az átvitel időfejlődése teljesen szabályos.

A semlegesítődött részecskék (4.3.3.5 ábra jobb oldala) esetében a legkisebb dőlésszögnél az átvitel gyenge csökkenését láthatjuk. Ez a csökkenés nem a kapillárisok blokkolódását jelenti, hanem éppen arra utal, hogy az átvitel javulásával a súrlódó szögben a falat megérintő rugalmas szórást szenvedő ionok száma csökken. Kisebb mértékben, de ez a relatív csökkenési tendencia látható 4.35°-nál is.



**4.3.3.5 ábra:** A 6 keV besugárzó energiájú <sup>22</sup>Ne<sup>7+</sup> ionok (bal oldal) és semlegesítődött Ne atomok (jobb oldal) átvitelének időfejlődése az egy kapillárisba eső töltések számának függvényében. Minden vizsgált dőlésszög esetében szabályos átviteli görbéket mértünk. A legkisebb dőlésszögnél a nagy ionáram miatt megnövekedett detektor holtidő következtében a kísérleti pontok kissé szórnak.

A kísérleti eredményeket összegezve, Ne<sup>7+</sup> ionok energiafüggő átvitelét vizsgáltuk PC minta esetében. A mérések egy részét hat különböző lövedék energián, egy 4.2° körüli nagyon szűk dőlésszög tartományban végeztük (3.72-4.44 között). Korábban nem mértek hasonló energiafüggést, csak a jelen munkánál jóval nagyobb kinetikus energián folytak vizsgálatok, ahol nem találtak blokkolódást. A legkisebb besugárzó energián, 3 keV-en határozott, de részleges blokkolódást tapasztaltunk. Az energiát növelve (4 keV, 4,25 keV) a kapillárisok elzáródásának mértéke csökkent, az ionátvitel maximuma nagyobb értéket ért el, mint a 3 keV-es lövedék esetében. Az átvitel visszaesésével bekövetkező blokkolódás azonban még mindig tisztán megfigyelhető az ionátviteli görbéken. A maximális átvitel elérése utáni csökkenés a növekvő energiával egyre kisebb, azaz a blokkolódás következtében végül kialakult egyensúlyi állapoti átvitel egyre nagyobb lesz. A következő energialépcsőnél (4,5 keV) az átviteli görbe érdekes viselkedését láthatjuk. A kezdeti emelkedés után a görbe élesen áll be egy közel konstans értékre, a növekedés úgy törik meg, hogy kiegyensúlyozza egy kismértékű csökkenés. A nagyobb energiákon (5 keV, 6 keV) szabályos átviteli görbéket mértünk. A kialakuló egyensúlyi átvitelek azonban olyan kis értékűek, hogy továbbra is feltételezhető egy – a monoton növekedést csak korlátozó, de nem megtörő – részleges blokkolódás.

Az átvitel energiafüggésének vizsgálata mellett adott energiákon (3 keV, 4,5 keV, 6 keV) tanulmányoztuk a kapillárisok átvitelének dőlésszögtől való függését is mind az ionok, mind a semlegesítődött részecskék vonatkozásában. A méréseket három különböző dőlésszögnél végeztük, ezek rendre ~3°, ~4°, ~6° körüliek (ld. 4.3.3.3, 4.3.3.4 és 4.3.3.5 ábrák). A legkisebb vizsgált lövedék energián (3 keV) mindkét részecske típus esetben, az összes mért dőlésszögnél erős, de részleges blokkolódást figyeltünk meg. A 4,5 keV-es lövedékek esetén az ionátvitelben a legkisebb dőlésszögnél még a kapillárisok kismértékű elzáródása látszik, a nagyobb szögek esetében pedig monoton növekedés utáni gyors egyensúlyi átvitel következik. A legnagyobb dőlésszögnél viszont szabályos átviteli görbét mértünk. A legnagyobb vizsgált energián mindhárom dőlésszögnél szabályos átvitelt tapasztaltunk. Az ionátvitel energiafüggéséről elmondható tehát, hogy a kapillárisok belsejében kialakuló töltéseloszlás miatt létezik egy kritikus lövedék energia, amely alatt a kapillárisok elektrosztatikusan (részlegesen) elzáródnak. Van egy átmeneti energia tartomány, amelyben az ionok átvitele monoton ugyan, de a kapillárisok elzáródásának jelei felfedezhetők. A nagyobb vizsgált energiákon pedig szabályos átvitelt mértünk. Az ionátvitel dőlésszög függéséről azt az információt nyertük, hogy a kapillárisok elzáródása a dőlésszög növelésével csökken.

Méréseink megmutatták, hogy a blokkolódás ionenergia-függő, és feltérképezték az átmenetet az átvitel visszaesésével járó blokkolódás és a monoton átvitel-növekedéssel, "szabályosan" beálló egyensúly között. Az egyensúlyi átvitel kis értéke az utóbbi esetben is valószínűsíti a részleges blokkolódás jelenlétét. Ez magyarázatot adhat arra, miért fordulnak elő korábbi mérésekben nagyon alacsony ionátvitelek kis dőlésszögek esetén is, különösen sűrű, szabályos lyukelrendezésű minták esetén [33,37].

Megmutattuk, hogy a blokkolódás, vagy legalábbis annak az átvitel csökkenésével járó, látványos formája csak bizonyos ionenergia alatt jelentkezik. Természetesen nagyobb energiákon a terelési képességek romlanak, így gyakorlati célok szempontjából ennek nem mindig van jelentősége.

Első közelítésben az eredmények úgy értelmezhetők, hogy a kapilláris minta belsejében kialakuló feszültség nagysága a vezetőképesség nemlineáris jellege miatt korlátozott, mintha az adott minta egy Zener-diódával lenne reprezentálható. Az így kialakuló tér blokkolhat kisebb energiáknál, és defókuszálással csökkentheti az átvitelt nagyobb energiáknál. Ezt a képet azonban megfelelő modellszámolásokkal alátámasztva lehet csak elfogadni.

Az adatok részletessége jó alapot adhat arra, hogy a kísérletek szimulációkkal való reprodukálása feltárja a kapillárisok belsejében zajló folyamatok alapvető jellemzőit. Ehhez azonban eddig nem rendelkeztünk megfelelő szimulációs technikával, amely a szomszédos csatornák és a távolabbi környezet hatásait is figyelembe veszi a kapillárisban kialakuló tér leírásában. A következő alfejezetben leírom azt a munkát, amelyet egy ilyen szimulációs technika kialakítása érdekében végeztünk, és ismertetem a szimulációs modell jelen változatával elért eredményeket.

A kísérleti munkák során a mérések előkészítésében és végzésében jelentős részt (saját részem a teljes munka kb. 80 %-a) vállaltam. A mért adatok kiértékelését én végeztem. Részt vettem az eredmények értelmezéséről folytatott vitákban. Ezen kísérletek előzetes eredményeiből eddig egy konferenciaközlemény született [163], és beküldés előtt áll egy tudományos közlemény, melynek első szerzője vagyok [164].

## 4.3.4 Új szimulációs modell kidolgozása

Ebben az alfejezetben azt a szimulációs módszert ismertem, amellyel megpróbáljuk leírni a kapillárisok belsejében lejátszódó folyamatokat. A modell két, jól elkülöníthető részből tevődik össze. Az egyik részben a SIMION nevű ionoptikai programban felépített elektródarendszer átvitelét modellezzük. A másik részben egy Mathematica keretprogramban írt számoló algoritmus segítségével határozzuk meg az egyes elektródákon felhalmozott töltés által indukált elektromos teret a további elektródákon.

A módszer lényege, hogy nem egyedi töltések terét számoljuk, hanem a kapilláris felületét rövidebb hengerpalástokra bontjuk, és minden hengert négy, 90 fokos palástdarabra vágunk szét (a terekre ezzel kvadrupól közelítést alkalmazunk). A továbbiakban úgy tekintjük, hogy egy-egy ilyen negyed-hengerpaláston a töltéssűrűség egyenletes. Ennek a palástdarabnak a tere jól számolható. A kapilláris-mintát határoló két aranyréteg hatása úgy vehető tekintetbe, hogy tükörtöltések végtelen sorának a terét számoljuk, ám a gyakorlatban igen jó pontosság érhető el 10 tag figyelembevételével. A szomszéd kapillárisokban lerakódott töltések tere ugyanígy figyelembe vehető soktagú, de véges összegek kiszámításával. A távolságok itt a kapillárissűrűségből számolhatók. Az összeg 1/R-es potenciál esetén elvileg a végtelenhez tartana, de az aranyrétegek miatt a sor konvergál. Ezzel, ha minden palástdarabon beállítunk egy feltételezett töltéssűrűséget, a kapillárisban kialakuló tér sok tag összegzésével kiszámítható.

Mindez elég bonyolultnak, és hosszadalmasnak tűnik, ám ha a palástdarabok elég kicsinyek, akkor élhetünk egy közelítéssel. A palástdarabokat fémlemezeknek tekinthetjük, melyek feszültségét a középpontjukban kiszámolt feszültséggel tekintjük egyenlőnek. Ezen fémlemezek tere igen hasonló az egyenként egyenletes töltéssűrűségű palástdarabok terével. A fémlemezek esetén azonban van egy lineáris egyenletrendszerünk:

$$U_i = \sum_{j=1}^n P_{ij} Q_j , \qquad (4.3.4.1)$$

ahol *n* az elektródák száma, *U<sub>i</sub>* az *i*-edik elektróda feszültsége, *Q<sub>j</sub>* a *j*-edik elektródán lévő töltés. A *P<sub>ij</sub>* négyzetes mátrix elemei az elektrosztatikából ismert indukciós együtthatók, átlós elemei pedig az egyedi fémlemezek kapacitásainak inverzei. A *P<sub>ij</sub>* mátrixot a Mathematica keretében írt programmal számítjuk ki. Ez a numerikus mátrix már tartalmazza az aranyozás által adott térlezárások hatását, és adott átlagos kapilláris-sűrűségek esetén a szomszéd kapillárisok hatását is. Tetszőleges töltéseket adva az elektródákra, a (4.3.4.1) formula megadja valamenynyi elektródán a feszültséget.

A töltött részecskék pályáinak meghatározását a SIMION programcsomaggal végezzük. Ennek a geometriát definiáló kiinduló fájljában felépítettem azt az elektródaelrendezést, amelyre a *P<sub>ij</sub>* mátrixot kiszámoltuk. A felhasználó saját programjait fogadó úgynevezett LUA felületén létrehoztam egy olyan programot, amelybe a futtatás kezdetén betöltjük a *P<sub>ij</sub>* mátrix elemeit, és a szimuláció során, valahányszor változnak a töltések, újra számoljuk az elektródafeszültségeket a (4.3.4.1) formula segítségével. A futás során a szimulációs program az elektródák terében kiszámolja az ionok pályáit, és megállapítja, hogy egy ion valamelyik elektródába becsapódott-e, vagy áthaladt a kapillárison.

Az ionokat úgy indítjuk, hogy azok a kívánt belépési szögben, előírt szög szórással érkezzenek a kapillárisba, a bemenő felületen egyenletes eloszlással. Minden *m*-edik (általában tízedik) ion után az elektródák töltéseit újra számoljuk, figyelembe véve az oda becsapódott ionok számát és a szomszédos elemek között folyó áramokat.

Ez utóbbiakat az elektródák feszültségeiből és az éppen vizsgált felületi töltésvándorlási modell által adott aktuális vezetőképességéből számíthatjuk ki. Ha az m darab ion beérkezéséhez szükséges átlagos  $\Delta t$  idő sokkal kisebb mint a  $G_{ki}$  vezetőképességek és kapacitások által megszabott időállandók, akkor a töltésváltozások első rendben, a  $\Delta Q_i = \Delta t \sum_{k=1}^{4} \Delta U_{ki} / G_{ki}$  összfüggéssel becsülhetők, ahol a k index a szomszédos elektródákon fut végig. Ohmikus vezetési modellben például  $G_{ki} = G_0 l/d$  közelítést alkalmazunk, ahol d az elektródák középpontjainak távolsága, l azok érintkezési hossza,  $G_0$  pedig a fajlagos vezetőképesség. A nemlineáris modell esetén ez a kapcsolat természetesen bonyolultabb.

A modellben egyszerre több kapilláris átvitelét fejlesztjük, és a futás végén átlagoljuk. A későbbi elemzés érdekében nagyon sok adatot (feszültségek, töltések) eltárolunk. Első teszteredményeinket az előző tézispontban megadott geometriájú kapillárisokon kaptuk. Ezekből mutatok be két példát a (4.3.4.1) és (4.3.4.2) ábrákon. Ezeknél a nemlineáris Frenkel-Poole vezetőképességi modellt alkalmazzuk. A szimuláció viszonylag gyors. Az ábrákon látható futások, amelyek 5 csatornát fejlesztettek párhuzamosan, átlagos személyi számítógépen 3-4 órás futási időt igényelnek.





4.3.4.1 ábra: A modell által szolgáltatott eredmény. A szimulációban 3 keV energiájú Ne<sup>7+</sup> ionok átvitelét modelleztük. A PC kapillárisok átmérője 200 nm, hosszuk 30 μm, sűrűségük 2×10<sup>8</sup> cm<sup>-</sup> <sup>2</sup>. A szimulációban a minta dőlésszöge Ψ=3°. A kritikus térerősség értékét Ecrit=3 V/µm, a vezetőképességét pedig 1×10<sup>-20</sup> S-re állítottuk be. Ezekkel a paraméterekkel a szimuláció szerint a kapillárisok nem blokkolódnak.

4.3.4.2 ábra: Egy másik példa, blokkolódást mutató eredmény. A szimulációban 3 keV energiájú Ne<sup>7+</sup> ionok átvitelét modelleztük. Α 30 µm hosszú PC kapillárisok átmérője ugyancsak 200 nm, sűrűségük is 2×10<sup>8</sup> cm<sup>-2</sup>. A minta dőlésszöge itt is  $\Psi=3^\circ$ . A kritikus térerősség értékét  $E_{crit}=6 V/\mu m$  (nagyobbra), a vezetőképességét pedig 1×10<sup>-20</sup> S-re (azonosra) állítottuk be. Ezekkel a paraméterekkel a szimuláció szerint a kapillárisok blokkolódnak. Ebben az esetben körülbelül 40 fC egy kapillárisba eső töltés után az átvitel teljesen blokkolódik.

Látható, hogy a nemlineáris felületi vezetési modell (ld. (2.5.5.2) formula) paramétereit variálva stacionárius átvitelt és blokkolódást is találtunk ugyanazon mintánál. A blokkolódás jellege azonban lényegesen eltér a mért átviteli görbéknél tapasztaltaktól. Az is lehetséges, hogy a (2.5.5.2) formula nemlineáris vezetési modellje finomításra szorul, vagy más modellel helyettesítendő.

Tekintetbe kell vennünk azt is, hogy a tengelyirányú teret a kapillárisok összessége alakítja ki, ezért a beeső ionnyaláb peremén ez kisebb lesz. Kialakulhat tehát olyan helyzet, amelyben a kapillárisok egy része blokkolódik, a széleken lévők pedig átvezetnek. Lehetséges tehát, hogy a kísérletileg kapott átvitel a (4.3.4.1) és (4.3.4.2) jellegű ábrák sorozataiból állítható össze.

Szimulációs modellünk jelenleg még fejlesztés alatt áll, közleményt róla még nem jelentettünk meg. Célkitűzésünk az, hogy olyan módszert alakítsunk ki, amellyel viszonylag gyorsan lehet különböző méretű és alakú elrendezéseket is számolni, és a térbeli felbontás (azaz az elektródaszám) variálásával meg lehessen találni az optimális kompromisszumot futási sebesség és pontosság között.

A modellt másodmagammal fejlesztettem ki. A koncepció közös kialakításán túl saját munkám a SIMION programcsomag keretében a felhasználói program kialakítása, a futtatások megtervezése és végrehajtása volt.

## 4.3.5 Nagyrendezettségű üveg minta átvitele

Az eddigi eredmények azt mutatják, hogy az egyes kapillárisokban kialakuló elektrosztatikus tér (amelyet a töltéselrendeződés hoz létre) függ a szomszédos kapillárisokban és a tágabb környezetben kialakuló töltéseloszlástól is. Ez azt jelenti, hogy a szomszédos kapillárisokban létrejött potenciálviszonyok az egyes kapillárisokban haladó ionok pályáját torzítják. Ha a szomszédos kapillárisok elég távol vannak, hatásukat egy átlagos térrel lehet modellezni, feltételezve, hogy valamennyi kapillárisba hasonló ionáram érkezik. Sűrű mintáknál már nem biztos, hogy ez a szemlélet helyes. A közvetlenül szomszédos csatornában lerakódó töltésfolt olyan nagy hatással lehet a pályákra, hogy a tekintett csatornában máshol rakódnak le a töltések, melyek viszont befolyásolják a szomszéd csatorna ionpályáit is. Ilyen módon a szomszédos csatornák, vagy kisebb csatornakötegek folyamatai szorosan összecsatolódhatnak. A szomszédság hatásának kiderítésére kezdtünk el vizsgálni egy olyan üveg mintát, amelyben a kapillárisok sűrűsége a lehető legnagyobb volt. Az eddigi vizsgálatokban a PET és PC minták esetében a kapillárisok véletlenszerűen lettek kialakítva a mintában, a kapillárisok egymáshoz képesti távolsága is véletlenszerű volt. Ennél a céltárgynál viszont jól meghatározott falvastagság van a kapillárisok között, és a kapillárisok nagyfokú rendezettsége látható. A kapillárisok átmérője ugyan a mikrométer nagyságrendbe esik, ám a hosszuk is milliméteres, így a hossz-átmérő arány 200, a nanokapillárisokéhoz hasonló értékű.

A méréseket az Atomki ECR ionforrásának nyalábján végeztük a már ismertetett mérési összeállításban. A lövedék Ar<sup>7+</sup> ion volt. A lövedék energiát változtatnunk kellett annak érdekében, hogy a mintán mérhető mennyiségű ion haladjon át. A lövedékenergia így rendre 3; 6; 10,5; 17,5 és 21 keV voltak.

A minta (4.3.5.1 ábra) egy körülbelül 1 mm vastag üveglemez volt, melyben nagy sűrűséggel és rendezettséggel helyezkedtek el az 5 µm átmérőjű kapillárisok. Ez az üveglemez egy félig elkészült MCP (sokcsatornás elektronsokszorozó) lemezének egy darabja volt. Hiányzott róla a másodlagos elektronok keltését segítő borítás. Mivel a minta ismeretlen forrásból származott, ezért XPS (Xrax Photoelectron Spectroscopy) módszerrel meghatároztuk az összetételét. Ezt a munkát Tóth József kollégám végezte, az összetétel meghatározását itt is köszönöm neki.

| Fémek | Fajlagos fématom-koncentráció (%) | Vegyület                      |
|-------|-----------------------------------|-------------------------------|
| Si    | 54,5                              | SiO <sub>2</sub>              |
| Са    | 13,7                              | CaO                           |
| Na    | 11,1                              | Na <sub>2</sub> O             |
| В     | 6,8                               | B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> |
| Ва    | 5,5                               | BaO                           |
| Mg    | 4,4                               | MgO                           |
| К     | 2,2                               | K <sub>2</sub> O              |
| Zr    | 1,8                               | ZrO <sub>2</sub>              |

**4.3.5.1 Táblázat:** A nagyrendezettségű üvegkapilláris mintának XPS-el meghatározott összetétele. Az XPS méréseket Tóth József végezte el, melyet ezúton is köszönök neki.

Az összetételmérés eredményét az 4.3.5.1-es táblázat foglalja össze. A táblázatban az látható, hogy egy adott kémiai elem milyen fajlagos koncentrációban (fématom %) található a mintában, valamint, hogy az adott elem milyen vegyületből származik. A kapillárisok a lemez felületére merőlegesen helyezkedtek el, így a kapillárisok hossza a lemez vastagságával volt egyenlő (1 mm). A hossz-átmérő arány 200, amely a nanokapillárisokkal végzett mérésekkel közel azonos volt. A minta geometriai nyitottsága 52 % volt. A minta mindkét oldalát egy ~20 nm-es porlasztott arany réteggel vontuk be (DC-sputtering, 15° dőlésszög alatt) azért, hogy a minta felületének feltöltődése miatt fellépő nemkívánt effektusokat elkerüljük. Áramméréssel a minta ellenállását is meghatároztuk. A két arany réteg között átfolyt kicsiny áramot mértük, miközben a minta két oldalára 200 V feszültséget kapcsoltunk. Teljesen pontos mérést nem állt módunkban végezni, mivel nem rendelkezünk olyan árammérő műszerrel, mely a pA tartomány alatt is képes lenne az áram mérésére, de azt meg tudtuk állapítani, hogy a minta ellenállása nagyobb, mint 10<sup>14</sup> Ω. Ez az érték mintegy hat nagyságrenddel nagyobb, mint az olyan MCP detektoré, amelyen rajta van a másodlagos elektronkeltést segítő réteg.

Az ionforrásból érkező nyalábáram a kísérletek alatt néhány száz (500-700) pA tartományban mozgott. Ezt a mérés folyamán folyamatosan mértük és rögzítettük azért, hogy a mért adatokat a bejövő ionáramra normálva a nyaláb időbeli fluktuációjának zavaró hatását kiküszöböljük. Így az átvitt ionhányad görbéje nem az idő függvényében, hanem a bejövő összes töltés függvényében ábrázolható. Az eredményül kapott ionátviteli görbék így simábbak, ezáltal könynyebben értelmezhetők lettek. A nyaláb divergenciája és a nyalábfolt átmérője a minta felületén a kollimátor méretéből (0,5 mm) és a pozícióérzékeny detektoron felvett intenzitáscsökkentett nyalábkép átmérőjéből lett megbecsülve. A tipikus nyalábdivergencia ~0,4° volt.



**4.3.5.1 ábra:** A minta optikai mikroszkópos felvétele 100-szoros nagyításban.

A mérés menete a következő volt: a mintán áthaladt argon részecskék kétdimenziós eloszlását vettük fel pozícióérzékeny detektor segítségével. A méréseket a nyalábirányhoz képest a minta különböző dőlésszögeinél végeztük. Az ionterelési jelenség időbeli fejlődésének megfigyelése érdekében a mérések időben elnyúltak, az adatgyűjtési idő sok esetben több óra is volt. Minden egyes "pont" felvétele 10 másodpercig tartott, amiből 9 s a valódi, folyamatos adatgyűjtés, 1 s alatt történt az adatok kiírása a számítógépre.

A kísérletek folyamán túlnyomó részben Ar<sup>7+</sup> ionokat és semlegesítődött Ar atomokat észleltünk. Az egyensúlyi állapotot közelítve az ionok száma lényegesen, több nagyságrenddel meghaladta a semleges atomok számát. Ugyanakkor a köztes töltésállapotokban jövő részecskék száma elenyésző, gyakorlatilag kimutathatatlan volt.

A pozíció érzékeny detektoron látható képet mutatja az 4.3.5.2 ábra. Az első képtől az utolsóig folyamatosan látható, nagy intenzitású foltot a detektorra érkező semleges részecskék hozzák létre. Ennek helye a mérés folyamán végig változatlan, ahogyan az ábrán is látszik, és ennek a foltnak az intenzitása sem nagyon változik az idő múlásával.

Látható, hogy az első 10 másodperces képkockán megjelenik egy kis intenzitású, de fókuszált ionfolt, tehát a mérés kezdetekor volt ionátvitel. A következő képeken ez a folt eltűnik, mintha az átvitel gyorsan blokkolódott volna. A 20-ik képen már tisztán látszik, hogy az ionfolt magasságában több kis fényerejű folt jelenik meg. Ezek száma fokozatosan nő és elkezdődik egy kaotikus, nagy területre kiterjedő



**4.3.5.2 ábra:** Az ionátvitel időbeli fejlődése 10 keV lövedékenergián,  $\Psi$ =2° dőlésszögnél, ahogyan a detektoron láthattuk. A képen a számok a képkockák számát jelölik. Tízzel megszorozva megkapjuk az eltelt időt, ami így összességében 4000 s volt, azaz némiképp több, mint egy óra.



**4.3.5.3 ábra:** A kapillárisokon áthaladt, 10 keV energiájú Ar<sup>7+</sup> részecskék átvitelének időfejlődése a lerakott töltés függvényében, Ψ=2° dőlésszög esetén.

folyamatosan változó ionátvitel kialakulása. A 390-ik képnél már elég jelentős átvitel alakul ki. A lemezpárra adott feszültséget kikapcsolva ez a folt visszatér centrálisan szimmetrikus helyzetébe (400-ik képkocka).

A szétszóródott ionfoltok intenzitásának integrálásával kapott teljes ionátvitel időfejlődését a 4.3.5.3 ábra mutatja.

Az átvitelben található csúcsokat nem az áram ingadozása okozza, mivel az nagyon stabilnak mondható. Arra következtettünk, hogy az átvitelben látható ingadozások valószínűleg a formálódó ionterelés kaotikus jellegét tükrözik.

A méréseket elvégeztük több, nagyobb lövedékenergián, valamint a mintának a nyalábirányhoz képest több dőlésszögénél is. A dolgozat hossza nem teszi lehetővé, hogy minden mérést bemutassak, de a legjellemzőbb, az előbbi példától eltérő időfejlődést bemutatom (4.3.5.4 ábra). A besugárzó energia itt 21 keV, a minta dőlésszöge a nyaláb irányához képest pedig  $\Psi$ =3° volt (4.3.5.4 ábra). Megfigyelhető, hogy az ionok átvitele azonnal megindul, amint az ionnyalábot a mintára engedjük.



**4.3.5.4 ábra:** Az ionátvitel időbeli fejlődése 21 keV lövedékenergián,  $\Psi$ =3° dőlésszögnél, ahogyan a detektoron láttuk.

Az ionfolt nem is tűnik el, mint a 10,5 keV lövedékenergia esetében, hanem a mérés végéig látható. Az ionátvitel fejlődése kezdetben ugyanúgy kaotikusan indul, mint a kisebb energián, de körülbelül a mérési idő 10 %-ának eltelte után az ionfolt fejlődése szabályossá válik. Az átvitel időbeli fejlődése (4.3.5.5 ábra) is lényegesen különbözik a 10 keV-es esettől. Az ionátvitel hatásfoka folyamatosan nő. 2500 nC integrált töltés felett a pontok szórása megnő. Ennek oka az, hogy a teljes mért impulzusszám megközelíti a detektor terhelhetőségi határát. Ez az oka annak is, hogy a mérést nem tudtuk folytatni.

Az ionátvitel fejlődésében az a legkülönösebb, hogy a kaotikus eloszlás elemeit adó kisebb foltok képkockáról képkockára vándorolnak. Erre mutat példát a 4.3.5.6 ábra.



**4.3.5.5 ábra:** A 20 keV energiájú Ar<sup>7+</sup> ionok átvitelének időbeli fejlődése,  $\Psi=3^{\circ}$  dőlésszög esetén. A mérést le kellett állítanunk, mert túl sok ion ment át a kapillárisokon, így a detektor holtideje nagyon megnőtt, a mérés eredményének bizonytalansága túl nagy lett.



**4.3.5.6 ábra:** Tipikus változások az átvitt ionok mintázatában 21 keV Ar<sup>7+</sup> ionok esetén két egymást követő képkockán. Az "A" folt eltűnik, a "B" folt felfelé mozdul, a "C" folt pedig előbukkan. Mindez körülbelül 10 másodperc alatt történik. A dőlésszög a nyalábirányhoz képest 5° volt.
Az egyes foltok intenzitása alapján valószínű, hogy azok egyetlen kapillárisból származnak. A foltok megjelenése, mozgása, és eltűnése az egyedi csatorna megnyílását, egy szomszéd csatorna töltődését, és az érintett csatorna elzáródását reprezentálhatják.

A megfigyelt kaotikus viselkedés arra enged következtetni, hogy a kapillárisok közötti vékony falak miatt az egyes kapillárisokban statisztikus jelleggel kialakuló elektrosztatikus terek olyan erősen befolyásolják a szomszéd kapillárisokban az ionok pályáját (és ezzel a kialakuló töltéslerakódást), hogy az egyes kapillárisok dinamikája összekapcsolódik, és képes kinagyítani az áramok statisztikus fluktuációit. A szomszédos csatornák közti szoros csatolódás tehát kaotikus, időben gyorsan változó ionátvitelt eredményezhet, legalábbis az átvitel fejlődésének bizonyos szakaszaiban. Ez izgalmas jelenség, melynek megértése komoly motivációt jelent a hatékonyabb modellek kifejlesztésére. Szimulációk nélkül a kaotikus viselkedés okát nem tudjuk minden kétséget kizáróan azonosítani. Az eddig alkalmazott szimulációs modellek ilyen csatolt kapillárisok kezelésére nem tűnnek alkalmasnak. Az előző tézispontban ismertetett modellt kívánjuk a jövőben ebben az irányban tovább fejleszteni. Reményeim szerint a majdani kutatómunkám keretében erre módom lesz.

A kísérletek során a mérések előkészítésében és végzésében jelentős részt (saját részem a teljes munka kb. 70 %-a) vállaltam. Az adatok kiértékelését én végeztem. Részt vettem az eredmények értelmezéséről folytatott vitákban. Ezen kísérlet eredményeiből született egy tudományos közlemény, melynek első szerzője vagyok [165].

# 5. Összefoglalás

Dolgozatomban az MTA Atommagkutató Intézetben végzett, az ionatom, ion-molekula és ion-felület ütközések tárgyköréhez tartozó kutatási és fejlesztési munkáimról számolok be. Koincidencia technikával vizsgáltam hidrogén ionok és atomok más atomokkal történő ütközéseiben lezajlott folyamatokat. Megterveztem és megépítettem egy speciális, molekulák töredezésének vizsgálatára dedikált párhuzamos síktükör spektrométert. Munkám túlnyomó részét a nanokapillárisok ionterelésének tanulmányozása tette ki. Vizsgáltam a kapillárisok belső felületén kialakuló töltésfoltok letöltődésének időbeli változásait. Kutattam a nanokapillárisok elektrosztatikus elzáródásának okát. Tanulmányoztam a kapilláris kötegek átvitelének a besugárzó ion energiájától való függését, és részt vettem egy szimulációs modell első változatának kidolgozásában. Végül megvizsgáltam egy nagyrendezettségű minta ionátvitelét.

A kísérleteket az Atomki különböző gyorsítóinak nyalábvégein végeztem. Az atomok többszörös ionizációjának vizsgálatára a VdG-1 gyorsító mellett került sor. Itt különböző energiájú H<sup>+</sup>, H<sup>0</sup> lövedékekkel bombáztuk a nemesgáz (He, Ne, Ar, Kr) céltárgy atomokat. A lövedék ütközés utáni töltésállapotával koincidenciában mértük a céltárgy atomok többszörös ionizációs hatáskeresztmetszeteit a bombázó energia függvényében. Vizsgáltuk a semleges H<sup>0</sup> atom árnyékoló elektronjának az ütközésekben játszott szerepét. A kísérleti eredményeket összehasonlítottuk elméleti számolások eredményeivel, melyek kielégítő, alacsonyabb ionizációs fokoknál igen jó egyezést mutattak. Megállapítottuk, hogy az ütközésekben a semleges lövedék elektronja passzív szerepet játszik, a semleges lövedék a proton lövedéknél kevésbé hatékonyan ionizál. Megállapítottuk továbbá, hogy amikor a lövedék sebessége közel áll a céltárgy belső-héj elektronjának sebességéhez, akkor a rezonáns befogást követő többszörös ionizáció domináns folyamattá válik.

A dolgozatban bemutattam az általam tervezett párhuzamos síktükör spektrométer tervezésének lépéseit. Ez a spektrométer kifejezetten molekulafragmentációs kísérletekhez készült. A mérőeszköz speciális követelményeknek kellett, hogy megfeleljen, amiket a mérés jellege és a mérési geometria szabott meg. Ilyenek voltak: a lehető legnagyobb megfigyelési szögtartomány elérése, a fragmentumok repülési úthosszának minimalizálása az ütközési térfogatból a detektorig, valamint az, hogy a mérések pontosításának érdekében a spektrométerbe bejutó részecskéket gyorsítani-lassítani lehessen. Mindezeknek a kívánalmaknak úgy kellett megfelelni, hogy eközben az analizátor felbontása is a lehető legjobb maradjon. A tervezés közben az analizátor és az elektrosztatikus lencse tulajdonságait a SIMION nevű ionpálya-szimulációs program segítségével vizsgáltam. A spektrométer kalibrálása és a molekula-fragmentációs kísérletek az Atomki 5 MV-os VdG gyorsítójának jobb 30°-os nyalábvégén folytak. Az eszközzel többnyire abszolút fragmentációs hatáskeresztmetszeteket határoztunk meg, és az eredményeket több folyóiratcikkben publikáltuk. Ezek a közlemények egy másik PhD dolgozat alapjait képezik, így ezekről a mérésekről itt nem számoltam be.

A doktori képzésem alatt végzett munkám legnagyobb hányadát a nanokapillárisok ionterelési képességének vizsgálata tette ki. Így a dolgozat *Eredmények* című fejezetében is ezek a vizsgálatok teszik ki a legnagyobb részt.

Vizsgáltam a PET mintákban kialakított kapillárisok ionterelő képességének lassú csökkenését kikapcsolt ionnyaláb esetén. Célunk a kapilláris belső falán kialakuló töltéseloszlás időbeni változásának vizsgálata volt a letöltődési folyamat közben. A méréseket eltérő kapilláris-sűrűségű céltárgyakon végeztük, a minták különböző dőlésszögeinél. A fel- és letöltődési folyamatok mérésével követtük az átvitt ionok és semlegesítődött részecskék viselkedésének dinamikáját. Az egyensúlyi átvitel beállta után a folyamatosan érkező ionnyaláb helyett csak hosszú időközönként érkező, rövid tesztimpulzus-sorozatokkal mintavételeztük a kapillárisok pillanatnyi átvitelét. Az impulzussorozat egyes tagjainál mért átvitelek egyezéséből megállapíthattuk, hogy a kapillárisok belső falát nem töltjük fel újra a rövid mintavételezés közben. A letöltődés során az átvitel időfüggése az exponenciális lecsengéstől lényegesen eltérő volt. Ezt csak a kapillárisok anyagának nemlineáris felületi vezetőképességét figyelembe vevő modellel tudtuk értelmezni. A modell kisszámú, fizikailag is értelmes paraméter használatával, különböző kapilláris-sűrűségek, valamint különböző dőlésszögek esetén is kielégítő pontossággal reprodukálja a mért kísérleti eredményeket.

Tanulmányoztam a nanokapillárisok elzáródását, mely a kapilliárisok belső falának elektrosztatikus túltöltődése miatt jön létre. A vizsgálatokat polikarbonát anyagú céltárgyakon végeztem 3 keV energiájú, Ar<sup>7+</sup> ionokkal. Az átvitt töltött részecskék mellett megfigyeltük a semlegesítődött részecskék átviteli dinamikáját is. Megmutattuk, hogy a vizsgált kapillárisok csak részben záródnak el, a beeső nyalábnak egy kis része mindig átjut a fólián. Azt találtuk, hogy a dőlésszög növelésével a kapillárisok elzáródásának mértéke csökkent. Egészen nagy dőlésszög esetén az elzáródás teljesen megszűnt. Az ionátvitelnek ezt a viselkedését egy egyszerű modellfüggvény segítségével viszonylag jól le tudtuk írni, ám annak eltérései a kísérleti eredményektől azt mutatták, hogy nem vettünk minden körülményt figyelembe a leírás során. További vizsgálatok voltak szükségesek, melyeket nemzetközi együttműködésben folytattunk. Ennek keretében vizsgáltam polietilén-tereftalát (PET) mintákban kialakított kapillárisok ionátvitelének blokkolódását a minta kapilláris-sűrűségének függvényében. A kísérleti eredmények hosszútávú stabil átvitelt mutattak, minden vizsgált kapilláris-sűrűség esetében. Más helyen gyártott PET mintáknál, másik laboratóriumban mérve viszont tapasztaltak a kapilláris-sűrűségtől függő blokkolódást. Az eredmények összevetéséből azt a következtetést vontuk le, hogy a kapillárisok elzáródása nagy kapilláris-sűrűségnél sem általános jelenség, sokkal inkább a kapillárisok belső falának felülétét érő kezelésekkel, valamint a céltárgy anyagának vezetőképességével van kapcsolatban. A falak anyagának vezetőképessége határozza meg ugyanis a felületen végbemenő töltésmozgásokat.

Ez a munka indukálta az újabb vizsgálatot, melyben szintén nemzetközi együttműködés keretében tanulmányoztuk a különböző vezetőképességek hatására a kapillárisok belső falának felületén kialakuló töltésfoltok létrejöttét. Ezt a kapillárisból kilépő részecskék irányának megfigyelésével végeztük. A kilépő részecskék iránya ugyanis a feltöltődés során változik, a kilépő ionok eloszlásának átlagos szöge gyakran oszcillál, és alakja is változhat. Azt találtuk, hogy míg a GSIben készült PC mintán végzett mérésekben az átlagos kilépési szögben jelentős oszcillációk voltak megfigyelhetők, addig az FLNR-ben készült PET mintákon az Atomkiban végzett mérések esetében oszcilláció nem mutatkozott. Különböző felületi vezetőképességeket feltételező szimulációk eredményei szerint kisebb vezetőképesség esetében jelentős oszcilláció alakult ki az átvitt ionok átlagos kilépési szögében, míg nagyobb vezetőképesség esetén egyáltalán nem jött létre oszcilláció. Ugyanakkor blokkolódás csak az oszcillációt mutató mintáknál lépett fel. Megállapítottuk, hogy a blokkolódást túlnyomórészt a felület vezetőképessége határozza meg. Vizsgálataink eredményeiből arra következtettünk, hogy a blokkolódás egy adott kapilláris-sűrűség felett nem általános jelenség.

Tanulmányoztam az ionátvitel lövedék-energia függését blokkolódó minták esetében. A kísérleteket az Atomkiban végeztük. A mérések során a lövedékenergiát a 3-6 keV energiatartományon változtattuk, az átvitt ionintenzitást több megfigyelési szögnél is tanulmányoztuk. A legkisebb vizsgált ionenergiák esetében a minta erőteljes, ám részleges blokkolódását figyeltük meg, a közepes energiákon monoton növekvő görbét mértünk, mely szemmel láthatóan magán viselte a blokkolódás jeleit. A két legnagyobb vizsgált energián a korábbi mérésekben már megszokott, szabályosnak nevezett átviteli görbe rajzolódott ki anélkül, hogy a kapillárisok elzáródásának jelei megfigyelhetők lettek volna. Az ionátvitel adott energián megfigyelt szögfüggése alapján azt láttuk, hogy a legkisebb mért energián a kapillárisok minden megfigyelési szögnél szinte teljesen blokkolódtak. A nagyobb energián a növekvő dőlésszöggel a blokkolódás mértéke csökkent, a legnagyobb megfigyelési szögnél el is tűnt. A legnagyobb vizsgált energiákon minden dőlésszögnél szabályos átviteli görbét mértünk. Ezzel az ionok által mutatott viselkedéssel összhangban volt a semleges részecskék időfejlődésének dinamikája is. Arra következtetésre jutottunk, hogy a blokkolódás mértékét az ionok bobázó energiája határozza meg. Ugyanakkor a mért alacsony átvitt ionintenzitások azt sugallják, hogy a magasabb energiákon is jelen van a blokkolódás, csak a szemmel látható jeleit nem tapasztaljuk.

Kidolgoztunk egy új megközelítést a kapillárisok ionátvitelének és ionterelésének szimulációjához. Az eddig ismert eljárásoktól eltérően a kapillárisok falát vezető elektródák sokaságával modelleztük. Az ezeken felhalmozódott töltések által indukált feszültség, így az általuk létrehozott elektromos tér kiszámolható, figyelembe véve a kapillárisok végeit lezáró földelt fémrétegek, illetve a szomszédos kapillárisok által kifejtett hatásokat is. Az adott elektróda-elrendezést implementáltam egy ionpálya-számoló programba, amely az adott elektróda elrendezésben az ionok pályáit sebességre optimalizált módon, automatizálva követi. Ez a felhasználói program figyeli az adott elektródá feszültségét, mely meghatározza a következő ciklusban érkező ionpályákat. A kapillárisok fala mentén történő töltésmozgásokat az elektróda szegmensek közötti vezetőképességekkel, különböző fizikai feltevésekre alapozva modelleztük. A program jelenlegi verziójában alkalmas a stabil átvitel kialakulásához vezető önszerveződő folyamat modellezésére, valamint a teljes blokkolódás leírására. Megmértem egy szabályos elrendezésű, nagy rendezettségű üveg-kapillárisokból álló minta ionterelési és átviteli tulajdonságait. A céltárgy eltért az eddigiektől abban a tekintetben, hogy méretei nagyságrendileg nagyobbak voltak (átmérő és hosszúság), ugyanakkor a hossz-átmérő aránya a nanokapilláris minták arányainak nagyságrendjébe esett. A kísérlet elsődleges célja az egyes kapillárisok ionátvitelére szomszédos kapillárisok által kifejtett hatások vizsgálata volt. A méréseket több dőlésszögnél és lövedékenergián is elvégeztük. Az átvitel erősen kaotikus módon fejlődött, amely csak nagyobb lövedékenergiákon ment át szabályos átvitelbe. A megfigyelt kaotikus viselkedést annak tulajdonítjuk, hogy a vékony falak miatt az egyes kapillárisokban statisztikusan kialakuló elektrosztatikus terek erősen hatnak a szomszédos kapillárisokban mozgó ionok pályáira. Ezáltal az egyes kapillárisok átvitelének dinamikája szorosan összecsatolódik, és ez nagyítja ki az áramok statisztikus fluktuációit. Ezt a jelenséget jelenleg nem tudjuk modellezni, az előző paragrafusban említett modellt szeretnénk ebbe az irányba is fejleszteni.

A dolgozatomban bemutatott munka az alapkutatások körébe tartozik. A kapillárisok ionterelése esetében potenciális alkalmazások lehetőségei is felmerülnek, de ehhez a folyamatok pontosabb megértése szükséges. A témakörbe tartozó vizsgálatok általános célja az, hogy az ionok terelődése tervezhető legyen, mely kulcsfontosságú a lehetséges jövőbeni alkalmazások szempontjából. Ehhez próbáltam itt ismertetett munkáimmal én is hozzájárulni.

### 6. Summary

In the present dissertation I report about my research and development activities at the Institute for Nuclear Research (Atomki), in Debrecen, Hungary in the fields of ion-atom, ion-molecule and ion-surface interactions. We studied the collisions of hydrogen ions and atoms with other atoms by coincidence technique. I designed and built a specific electrostatic parallel plate spectrometer, which was dedicated to investigate molecular fragmentation. My main topic was the study of ion guiding by nanocapillaries. I performed measurements to follow the time development of the charge patches at the inner capillary wall. I studied the reasons of the blocking phenomenon in nanocapillary samples and the incident energy dependence of the transmission through nanocapillaries. I significantly contributed to the development of the first version of a new simulation method. Finally, I measured the transmission and guiding properties of a highly ordered microcapillary glass sample.

The experiments were carried out at different beamlines of different accelerators in Atomki. Multiple ionization of atoms was investigated at the beamline of VdG-1 accelerator. Noble gas (He, Ne, Ar and Kr) target atoms were bombarded by H<sup>+</sup> and H<sup>0</sup> projectiles in a wide energy range. The multiple ionization cross section of the target was measured in coincidence with the charge state of the scattered projectile as a function of primary energy. We studied the screening role of the electron of neutral H<sup>0</sup> atom. The experimental data were analyzed by comparing them with the results of classical CTMC and nCTMC calculations. At low degrees of ionization a good overall agreement was found. The neutral Hatom was less effective in ionization than the proton. We concluded that the projectile electron played a passive role in the collisions. In the impact energy region where the velocity of the projectile matched the velocity of the inner-shell electron, the resonant capture followed by multiple ionization became the dominant process.

The next part of my dissertation is the development of a specific parallel plate spectrometer. This device was directly dedicated for molecular fragmentation experiments. Specific demands followed from the experimental conditions: i) The largest possible range in observation angle was essential for measuring the almost full angular distribution, so the spectrometer should be turned close to 0° and 180° observation angles without touching the beam. ii) The path of the ions from the collision volume to the detector should be short for minimizing charge transfer with the rest gas. iii) It was a demand to being able to accelerate and decelerate the particles before entering the analyzer part of the spectrometer in order to improve transmission or resolution, respectively. Within these boundaries, the possible best energy resolution had to be achieved. Possible solutions for the analyzer and the electrostatic lens were analyzed and determined by using the SIMION ion and electron optics simulator program. The molecular fragmentation experiments were performed at the right 30° beamline of 5-MV VdG type accelerator of Atomki. Mostly absolute fragmentation cross sections were determined by this device, and the results were published in Physical Review A papers (which belong to another PhD thesis).

During my PhD period the largest part of my work was devoted to the investigation of ion transmission and guiding by insulator nanocapillaries. Thus, the largest part of my thesis is devoted to this topic, in both reviewing the literature and reporting my results.

The slow decrease of the ion guiding ability of PET nanocapillaries with turned off beam was investigated by short monitoring pulses. The aim was to study the temporal evolution of the charge distribution evolved on the inner capillary wall during the discharging process. The measurements were performed on samples with different areal densities. The dynamic behavior of transmitted ions and neutral particles was observed during both the charging up and discharging processes. After the equilibrium transmission was achieved the continuous beam was switched off, and the transmission of the capillaries was monitored by triplets of short pulses with increasing long breaks between the triplets. From the conformity of the measured transmission at the individual pulses of the triplets it was concluded that the capillary walls were not recharged during the short sampling pulses. The time dependency of the transmission of the discharge process was found to be significantly different from the exponential decrease. This could be interpreted only within a nonlinear surface conductivity model. The measured experimental data were satisfactorily described by such a model with a few physical parameters at different areal densities and tilt angles of the samples.

The blocking of the capillaries was also studied. This phenomenon is caused by the overcharge of the inner capillary wall. The measurements were performed by 3-keV Ar<sup>7+</sup> ion impact on a polycarbonate sample with nanocapillaries of 200nm diameter. Beyond the transmitted charged particles, the dynamics of time evolution of the neutralized projectiles was also studied. It was shown that the capillaries were only partially blocked, a small part of the incoming beam always could be guided through the foil. It was found that the extent of blocking was decreased with increasing tilt angle. In case of the highest studied tilt angles the blocking vanished. This behavior of the transmission could be relatively well described by a simple model function, but many open questions remained. Further investigations were needed, which were done within the framework of an international collaboration. The blocking of ion transmission through PET nanocapillaries was investigated as a function of areal densities. Long-term sta-

ble transmission was observed for all of the studied capillary densities for samples prepared in one laboratory. Measurements on different PET samples originating from another laboratory shown an areal-density dependent blocking. From the comparison of our results with those obtained by the other laboratory, we concluded that the blocking of the transmission was not a general feature above a certain capillary density. It was a strong indication that it is much more related to the surface treatments and the conductivity of the target material.

This indication motivated our next study. Within the framework of the same collaboration another effect of the conductivity was identified. We found that the evolution of charged patches at the inner capillary surfaces was strongly affects the angular and intensity patterns during the development of the transmission. We measured the mean direction of particles emitted from the capillary. During the charging up process the direction of those particles sometimes dramatically changed, the mean angle of the distribution of the outgoing ions often shown oscillations. In case of a polycarbonate sample, measured at another laboratory, strong oscillations in the mean emission angle were observed, but such a structure was not found in the PET data measured at Atomki. In case of low conductivities simulations predicted strong oscillations in the mean emission angle of the transmitted ions, while with higher conductivities oscillations were not developed. Blocking evolved only in case of those capillaries, where strong oscillations were observable. We concluded that the blocking was mostly determined by the field dependency of conductivity.

For studying another parameter for the blocking effect, I measured the ion transmission as a function of the incident ion energy. I selected a sample, which got partially blocked at 3 keV ion energy. The experiments were performed at Atomki. The kinetic energy of the incoming ions was varied in the energy range of 3-6 keV. The transmitted ion intensity was observed at different tilt angles for all impact energies. At low incident energies strong, but only partial blocking of the capillaries was observed. At medium energies monotonically increasing transmission was measured, which was visibly affected by the blocking. At the two highest ion energies regular transmission has been observed, the signs of the blocking were not visible. At the lowest incident energy, the capillaries were almost totally blocked at all tilt angles. At higher energy, the extent of blocking was decreased with increasing tilt angle. At the highest investigated energy, the transmission was found to be regular for all of the studied tilt angles. The neutral

particle dynamics was in accordance with this behavior of the transmitted ions. The strength of the blocking was strongly affected by the incident energy of ions. It is suggested by the measured low transmitted intensity that the partial blocking of the capillaries still exists in case of higher energies too but not visible signs of this was observable.

A new approach of ion guiding and ion transmission simulation was also developed with my significant contribution. Contrary to the so far applied methods, we modelled the capillary walls by an ensemble of conductive electrodes. The voltage induced by the accumulated charges on these electrodes, and thus the evolved electrostatic field can be calculated in a straightforward manner. The grounded golden layers at both ends of capillaries and the effects exerted by the neighboring capillaries can be taken into account in the calculations as well. Then the electrode arrangement, and the calculated matrix of the linear connection between electrode charges and electrode voltages is implemented into the user program unit of an ion-optical simulator program, which calculates the trajectories of the charged particles in the field in a velocity optimized, automatic manner. Ion impacts into the electrodes are recorded by this user program and the voltage is recalculated in every cycle. The subsequent ion trajectories are determined by the new voltages. The motion of charge carriers along the capillary surface is modelled by the conductivities between the electrodes. These conductivities can be calculated on the basis of different physical concepts. The present version of the program is suitable for modelling the evolution of the self-organizing process leading to stable transmission formation and the description of total blocking of the capillaries.

Finally, I studied the ion transmission and ion guiding capabilities of a regularly arranged, highly ordered glass capillary sample. This target was different from those studied so far in the sense, that the capillary diameter and length was bigger, but the aspect ratio of the capillaries was similar to the nanocapillaries. The aim was to study the transmission when a strong cross talk can be expected between neighboring capillaries. The experiments were performed at different incident energies and tilt angles. The development of the transmission was found to be strongly chaotic, the transmission turned to be regular only at the highest ion energy. The observed chaotic behavior was attributed to the fact, that due to the narrow capillary walls, the trajectories of ions in a capillary were highly affected by the electrostatic field statistically evolved in the neighboring

capillaries. In this way, the dynamics of individual capillaries became closely coupled, magnifying the statistical fluctuations of the current. This phenomenon we cannot model at present, but the simulation method described in the previous paragraph should be extended in this direction too.

The works presented in my dissertation belong to the category of fundamental research. Potential applications on ion guiding through nanocapillaries are likely, but for achieving that goal, more accurate and deeper study of the process is needed. The predictability of ion guiding is the general aim of the investigations in this topic, this is the key feature from the point of view of possible future applications. I tried to contribute to these efforts with my work.

### 7. Köszönetnyilvánítás

Dolgozatom megírásában sokaktól kaptam támogatást. Név szerint felsorolni őket hosszadalmas volna, ezért a következőkben csak azoknak mondok név szerint köszönetet, akik közvetlenül támogatták, segítették a dolgozat létrejöttét. A dolgozat létrejöttét elsősorban témavezetőmnek, Dr. Sulik Bélának köszönöm. Azt is köszönöm, hogy munkámat mindig a helyes irányba terelte, és azt, hogy az előremutató, építő megbeszélésekből nagyon sokat tanultam tőle. Köszönettel tartozom Dr. Juhász Zoltán, és Dr. Kovács Sándor kollégáimnak folyamatos segítségükért és a közösen elvégzett munkákért. A lehetőségért, hogy közös kísérletekben vehettem részt, valamint a hasznos beszélgetésekért és segítségért köszönettel tartozom Dr. Sarkadi László és Dr. Kövér Ákos munkatársaimnak. Minden segítségért és támogatásért köszönetet mondok valamennyi, az Atomi Ütközések Laboratóriumában dolgozó munkatársamnak. Köszönöm az Elektron-ciklotronrezonanciás ionforrás mellett dolgozó munkatársaimnak, hogy a kísérletek elvégzését lehetővé tették, minden műszaki körülményt biztosítottak és konstruktívan hozzájárultak az eredmények értelmezéséhez is a mérések közben folytatott beszélgetések alkalmával. A szakmai segítség mellett fontos volt számomra a nem szakmai segítséget nyújtók támogatása is. Így végül, de nem utolsó sorban megköszönöm páromnak és családomnak, hogy tanulmányaim során folyamatosan támogattak és bíztak bennem.

## 8. Irodalomjegyzék

- A. Arnau, F. Aumayr, P. M. Echenique, M. Grether, W. Heiland, J. Limburg, R. Morgenstern, P. Roncin, S. Schippers, R. Schuch, N. Stolterfoht, P. Varga, T. J. M. Zouros, H. P. Winter, Surface Science Reports 27, 113 (1997).
- [2] H. Winter, F. Aumayr, Journal of Physics B: At. Mol. Opt. Phys 32, R39 (1999).
- [3] http://www.iap.tuwien.ac.at/www/atomic/surface/index
- [4] H. G. Berry, Reports on Progress in Physics **40**, 155 (1977).
- [5] Yamazaki és munkatársai, J. Phys. Soc. of Japan 65, 1199 (1996).
- [6] H. Masuda, H. Yamada, M. Satoh, H. Asoh, M. Nakao, T. Tamamura, Applied Physics Letters **71**, 2770 (1997)..
- [7] K. Tőkési, L. Wirtz, C. Lemell, J. Burgdörfer, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics 61, 020901 (R) (2000).
- [8] K. Tőkési, L. Wirtz, C. Lemell, J. Burgdörfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 164, 504 (2000).
- [9] K. Tőkési, L. Wirtz, C. Lemell, J. Burgdörfer, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics **64**, 042902 (R) (2001).
- [10] N. Stolterfoht, J.H. Bremer, V. Hoffmann, D. Fink, Transmission of 3 keV Ne<sup>7+</sup> through 80 nm sized ion tracks etched in thin Mylar foils, Proceedings of the 10th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions, in: Book of Abstracts, Monday posters, Berkeley, CA, (2000).
- [11] N. Stolterfoht, J. H. Bremer, V. Hoffmann, R. Hellhammer, D. Fink, A. Petrov, B. Sulik, Physical Review Letters **88**, 1332011 (2002).
- [12] S. Ninomiya, Y. Yamazaki, F. Koike, H. Masuda, T. Azuma, K. Komaki, K. Kuroki, M. Sekiguchi, Physical Review Letters **78**, 4557 (1997).
- [13] D. H. Li, Y. Y. Wang, Y. T. Zhao, G. Q. Xiao, D. Zhao, Z. F. Xu, F. L. Li, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 267, 469 (2009).
- [14] G. Víkor, R. T. R. Kumar, Z. D. Pešič, N. Stolterfoht, R. Schuch, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 233, 218 (2005).

- Y. Kanai, M. Hoshino, T. Kambara, T. Ikeda, R. Hellhammer, N. Stolterfoht,
  Y. Yamazaki, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research,
  Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 258, 155 (2007).
- [16] M. Fürsatz, W. Meissl, S. Pleschko, I. C. Gebeshuber, N. Stolterfoht, H. P. Winter, F. Aumayr, Journal of Physics: Conference Series 58, 319 (2007).
- [17] R. Hellhammer, J. Bundesmann, D. Fink, N. Stolterfoht, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 258, 159 (2007).
- [18] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, J. Bundesmann, D. Fink, Radiation Effects and Defects in Solids **162**, 515 (2007).
- [19] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, J. Bundesmann, D. Fink, Y. Kanai, M. Hoshino, T. Kambara, T. Ikeda, Y. Yamazaki, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **76**, 022712 (2007).
- [20] R. Hellhammer, D. Fink, N. Stolterfoht, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 261, 149 (2007).
- [21] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, J. Bundesmann, D. Fink, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics **77**, 032905 (2008).
- [22] M. Keller, G. Zschornak, U. Kentsch, Journal of Physics: Conference Series 163, 012090 (2009).
- [23] Y. Y. Wang, D. H. Li, Y. T. Zhao, G. Q. Xiao, Z. F. Xu, F. L. Li, X. M. Chen, Journal of Physics: Conference Series **194**, 132032 (2009).
- [24] Y. Kanai, M. Hoshino, T. Kambara, T. Ikeda, R. Hellhammer, N. Stolterfoht, Y. Yamazaki, Journal of Physics: Conference Series **194**, 012068 (2009).
- [25] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, D. Fink, B. Sulik, Z. Juhász, E. Bodewits, H. M. Dang, R. Hoekstra, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **79**, 022901 (2009).
- Y. Kanai, M. Hoshino, T. Kambara, T. Ikeda, R. Hellhammer, N. Stolterfoht,
  Y. Yamazaki, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics
  79, 012711 (2009).
- [27] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, J. Bundesmann, D. Fink, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 267, 226 (2009).
- [28] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, D. Fink, B. Sulik, Z. Juhász, E. Bodewits, H.M. Dang, R. Hoekstra, Nuclear Instruments and Methods in Physics

Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **267**, 669 (2009).

- [29] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z. Juhász, B. Sulik, E. Bodewits, H. M. Dang, R. Hoekstra, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 82, 052902 (2010).
- [30] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, B. Sulik, Z. Juhász, V. Bayer, C. Trautmann,
  E. Bodewits, R. Hoekstra, Physical Review A Atomic, Molecular, and
  Optical Physics 83, 062901 (2011).
- [31] N. Stolterfoht, E. Bodewits, R. Hellhammer, Z. Juhász, B. Sulik, V. Bayer, C. Trautmann, R. Hoekstra, Journal of Physics: Conference Series 388, 012049 (2012).
- [32] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, B. Sulik, Z. Juhász, V. Bayer, C. Trautmann,
  E. Bodewits, G. Reitsma, R. Hoekstra, Physical Review A Atomic,
  Molecular, and Optical Physics 88, 032902 (2013).
- [33] M. B. Sahana, P. Skog, G. Víkor, R. T. RajendraKumar, R. Schuch, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics **73**, 040901 (2006).
- [34] H. Q. Zhang, P. S. Skog, R. S. Schuch, Journal of Physics: Conference Series 163, 012092 (2009).
- [35] H. Q. Zhang, P. Skog, R. Schuch, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics **82**, 052901 (2010).
- [36] S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, L. Piraux, Z. Juhász, S. Biri, É. Fekete, I. István, F. Gáll, B. Sulik, G. Víkor, J. Pálinkás, N. Stolterfoht, Nanotechnology 17, 3915 (2006).
- [37] P. Skog, I. L. Soroka, A. Johansson, R. Schuch, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 258, 145 (2007).
- [38] P. Skog, H. Q. Zhang, R. Schuch, Physical Review Letters **101**, 223202 (2008).
- [39] R. Schuch, A. Johansson, R. T. R. Kumar, M. B. Sahana, P. Skog, I. L. Soroka,G. Vikor, H. Q. Zhang, Canadian Journal of Physics 86, 327 (2008).
- [40] X. M. Chen, F. Y. Xi, X. Y. Qiu, J. X. Shao, G. Q. Xiao, Y. Cui, G. Z. Sun, Chinese Physics B 18, 1955 (2009).
- [41] Y. F. Chen, X. M. Chen, F. J. Lou, J. Z. Zhang, J. X. Shao, G. Z. Sun, J. Wang, F. Y. Xi, Y. Z. Yin, X. A. Wang, J. K. Xu, Y. Cui, B. W. Ding, Chinese Physics B 18, 2739 (2009).

- [42] Z. Juhász, B. Sulik, S. Biri, I. István, K. Tőkési, É. Fekete, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, G. Víkor, E. Takács, J. Pálinkás, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **267**, 321 (2007).
- [43] F. Y. Xi, H. P. Liu, Y. X. Lu, X. M. Chen, Y. Y. Wang, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 268, 2292 (2010).
- [44] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z. Juhász, B. Sulik, V. Bayer, C. Trautmann,
  E. Bodewits, A. J. de Nijs, H. M. Dang, R. Hoekstra, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics **79**, 042902 (2009).
- [45] X. Wang, Y. Zhao, Y. Y. Wang, R. Cheng, D. Li, S. Zhang, G. Xiao, Physica Scripta **T144**, 014046 (2011).
- [46] 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, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 279, 177 (2012).
- [47] H. Q. Zhang, N. Akram, P. Skog, I. L. Soroka, C. Trautmann, R. Schuch, Physical Review Letters **108**, 193202 (2012).
- [48] H. Q. Zhang, N. Akram, I. L. Soroka, C. Trautmann, R. Schuch, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics **86**, 022901 (2012).
- [49] T. M. Kojima, T. Ikeda, Y. Kanai, Y. Yamazaki, V. A. Esaulov, Journal of Physics D 44, 355201 (2011).
- [50] G. P. Pokhil, K. A. Vokhmyanina, L. A. Zhilyakov, T. Ikeda, Y. Kanai, Y. Iwai, T. M. Kojima, Y. Yamazaki, Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics 72, 638 (2008).
- [51] G. P. Pokhil, K. A. Vokhmyanina, A. I. Mironchik, Journal of Surface Invesigation X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques **3**, 326 (2009).
- [52] G. P. Pokhil, K. A. Vokhmyanina, L. A. Zhilyakov, T. I. Y. Yamazaki, Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics 74, 221 (2010).
- [53] G. P. Pokhil, V. V. Cherdyntsev, Journal of Surface Invesigation X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques **7**, 356 (2013).
- [54] T. Ikeda, Y. Iwai, T. M. Kojima, S. Onoda, Y. Kanai, Y. Yamazaki, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **287**, 31 (2012).

- [55] T. Ikeda, Y. Kanai, T. M. Kojima, Y. Iwai, T. Kambara, Y. Yamazaki, M. Hoshino, T. Nebiki, T. Narusawa, Applied Physics Letters 89, 163502 (2006).
- [56] T. Ikeda, T. M. Kojima, Y. Iwai, Y. Kanai, T. Kambara, T. Nebiki, T. Narusawa, Y. Yamazaki, Journal of Physics: Conference Series 58, 68 (2007).
- [57] T. Ikeda, Y. Kanai, T. M. Kojima, Y. Iwai, M. Hoshino, T. Kobayashi, G. Pokhil, Y. Yamazaki, Journal of Physics: Conference Series 88, 012031 (2007).
- [58] A. Cassimi, T. Muranaka, L. Maunoury, H. Lebius, B. Manil, B. A: Huber, T. Ikeda, Y. Kanai, T. M. Kojima, Y. Iwai, T. Kambara, Y. Yamazaki, T. Nebiki, T. Narusawa, International Journal of Nanotechnology 5, 809 (2008).
- [59] M. Keller, G. Zschornak, U. Kentsch, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 269, 1032 (2011).
- [60] A. Cassimi, T. Ikeda, L. Maunoury, C. L. Zhou, S. Guillous, A. Mery, H. Lebius, A. Benyagoub, C. Grygiel, H. Khemlice, P. Roncin, H. Merabet, J. A. Tanis, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics 86, 062902 (2012).
- [61] E. Gruber, N. Stolterfoht, P. Allinger, S. Wampla, Y. Wang, M. J. Simon, F. Aumayr, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 340, 1 (2014).
- [62] Y. Iwai, T. Ikeda, T. Kojima, Y. Yamazaki, K. Maeshima, N. Imamoto, T. KObaxashi, T. Nebiki, T. Narusawa, G. P. Pokhil, Applied Physics Letters 92, 023509 (2008).
- [63] K. Schiessl, W. Palfinger, C. Lemell, J. Burgdörfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 232, 228 (2005).
- [64] K. Schiessl, W. Palfinger, K. Tokési, H. Nowotny, C. Lemell, J. Burgdörfer, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 72, 062902 (2005).
- [65] K. Schiessl, W. Palfinger, K. Tokési, H. Nowotny, C. Lemell, J. Burgdörfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 258, 150 (2007).
- [66] C. Lemell, K. Schiessl, H. Novotny, J. Burgdörfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 256, 66 (2007).

- [67] K. Schiessl, C. Lemell, K. Tőkési, J. Burgdörfer, Journal of Physics: Conference Series 163, 012081 (2009).
- [68] K. Schiessl, C. Lemell, K. Tőkési, J. Burgdörfer, Journal of Physics: Conference Series **194**, 012069 (2009).
- [69] T. Schweigler, C. Lemell, J. Burgdörfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **269**, 1253 (2011).
- [70] N. Stolterfoht, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics 87, 012902 (2013).
- [71] N. Stolterfoht, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **317**, 96 (2013).
- [72] N. Stolterfoht, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics 87, 032901 (2013).
- [73] N. Stolterfoht, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics 89, 062706 (2014).
- [74] N. Stolterfoht, E. Gruber, P. Allinger, S. Wampl, Y. Wang, M. J. Simon, F. Aumayr, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **91**, 032705 (2015).
- [75] A. R. Milosavljevic, G. Víkor, Z. D. Pesic, P. Kolarz, D. Sevic, B. P. Marinkovic, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, L. Piraux, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **75**, 030901 (2007).
- [76] A. R. Milosavljevic, J.Jureta, G. Víkor, Z. D. Pesic, D. Sevic, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, B. P. Marinkovic, Europhysics Letters 86, 23001 (2009).
- [77] A. R. Milosavljevic, K. Schiessl, C. Lemell, K. Tőkési, M. Mátéfi-Tempfli, S. Mátéfi-Tempfli, B. P. Marinkovic, J. Burgdörfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 279, 190 (2012).
- [78] S. Das, B. S. Dassanayake, M. Winkworth, J. L. Baran, N. Stolterfoht, J. A. Tanis, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 76, 042716 (2007).
- [79] S. Das, B. S. Dassanayake, N. Stolterfoht, J. A. Tanis, Revista Mexicana de Fisica S **56**, 66 (2010).
- [80] B. S. Dassanayake, J. A. Tanis, S. Das, N. Stolterfoht, Revista Mexicana de Fisica S 56, 71 (2010).

- [81] D. Keerthisinghe, B. Dassanayake, S. Wickramarachchi, A. Ayyad, N. Stolterfoht, J. Tanis, AIP Conference Proceedings 1525, 36 (2013).
- [82] B. S. Dassanayake, D. Keerthisinghe, S. Wickramarachchi, A. Ayyad, S. Das, N. Stolterfoht, J. A. Tanis, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 298, 1 (2013).
- [83] D. Keerthisinghe, B. Dassanayake, S. Wickramarachchi, N. Stolterfoht, J.
  A. Tanis, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section
  B: Beam Interactions with Materials and Atoms **317**, 105 (2013).
- [84] D. Keerthisinghe, B. S. Dassanayake, S. J. Wickramarachchi, N. Stolterfoht, J. A. Tanis, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics 92, 012703 (2015).
- [85] W. Wang, D. Qi, D. Yu, M. Zhang, F. Ruan, J. Chen, X. Cai, Journal of Physics: Conference Series 163, 012093 (2009).
- [86] B. S. Dassanayake, S. Das, R. J. Bereczky, A. Ayyad, K. Tőkési, J. A. Tanis, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 81, 020701 (2010).
- [87] B. S. Dassanayake, S. Das, J. A. Tanis, AIP Conference Proceedings 1336, 154 (2011).
- [88] B. S. Dassanayake, S. Das, A. Ayyad, R. J. Bereczky, K. Tőkési, J. A. Tanis, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 269, 1243 (2011).
- [89] B. S. Dassanayake, S. Das, A. Ayyad, J. A. Tanis, Physica Scripta 269, 014041 (2011).
- [90] B. S. Dassanayake, R. J. Bereczky, S. Das, A. Ayyad, K. Tőkési, J. A. Tanis, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 83, 012707 (2011).
- [91] S. Wickramarachchi, B. Dassanayake, D. Keerthisinghe, A. Ayyad, J. A. Tanis, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 269, 1248 (2011).
- [92] W. Wang, J. Chen, D. Y. Yu, B. Yang, Y. H. Wu, M. W. Zhang, F. F. Ruan, X. Cai, Physica Scripta **T144**, 014023 (2011).
- [93] S. J. Wickramarachchi, T. Ikeda, D. Keerthisinghe, B. S. Dassanayake, J. A. Tanis, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **317**, 101 (2013).

- [94] S. J. Wickramarachchi, B. S. Dassanayake, D. Keerthisinghe, T. Ikeda, J. A. Tanis, Physica Scripta **T156**, 014057 (2013).
- [95] K. Vokhmyanina, G. Pokhil, P. Zhukova, E. Irribara, A. Kubankin, V. Levina, R. Nazhmudinov, A. Oleinik, I. Kishin, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 355, 307 (2015).
- [96] G. Sun, J. Wang, Y. Chen, J. Xu, C. Zhou, J. Shao, Y. C. B. Ding, Y. Yin, X. Wang, F. Lou, X. Lv, X. Qui, J. Jia, L. Chen, F. Xi, Z. Chen, L. Li, Z. Liu, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **79**, 052902 (2009).
- [97] L. Chen, Y. Guo, J. Jia, H. Zhang, Y. Cui, J. Shao, Y. Yin, X. Qiu, X. Lv, G. Sun, J. Wang, Y. Chen, F. Xi, X. Chen, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 84, 032901 (2011).
- [98] L. Chen, X. Lv, J. Jia, M. Ji, P. Zhou, G. Sun, J. Wang, Y. Chen, F. Xi, Y. Cui, J. Shao, X. Qiu, Y. Guo, X. Chen, Journal of Physics B 44, 045203 (2011).
- [99] H. Wang, L. Chen, X. Lv, C. Zhou, J. Jia, P. Zhou, J. Shao, M. Ji, X. Chen, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 286, 351 (2012).
- [100] D. Feng, J. Shao, L. Zhao, M. Ji, X. Zhou, G. Wang, Y. Ma, W. Zhou, H. Zhou,
  Y. Li, M. Zhou, X. Chen, Physical Review A Atomic, Molecular, and
  Optical Physics 85, 064901 (2012).
- K. Vokhmyanina, L. A. Zhiyakov, A. V. Kostanovsky, V. S. Kulikauskas, V.
  P. Petukhov, G. P. Pokhil, Journal of Physics A 39, 4775 (2006).
- [102] H. F. Krause, C. R. Vane, F. W. Meyer, H. M. Christen, Journal of Physics: Conference Series 58, 323 (2007).
- [103] H. F. Krause, C. R. Vane, F. W. Meyer, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics 75, 042901 (2007).
- [104] A. Ayyad, B. Dassanayake, A. Kayani, J. Tanis, AIP Conference Proceedings 1336, 91 (2011).
- [105] N. Fujita, K. Ishii, H. Ogawa, Physica Scripta **T144**, 014033 (2011).
- [106] N. Fujita, K. Ishii, H. Ogawa, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 269, 1023 (2011).
- [107] G. A. B. Gál, I. Rajta, S. Z. Szilasi, Z. Juhász, S. Biri, C. Cserháti, A. Csik, B. Sulik, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 269, 2322 (2011).

- [108] T. Nebiki, T. Yamamoto, T. Narusawa, Journal of Vacuum Science and Technology **21**, 1671 (2003).
- [109] T. Nebiki, M. H. Kabir, T. Narusawa, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 249, 226 (2006).
- [110] T. Nebiki, D. Sekiba, H. Yonemura, M. Wilded, S. Ogura, H. Yamashita, M. Matsumoto, K. Fukutani, T. Okano, J. Kasagi, Y. Iwamura, T. Itoh, S. Kuribayashi, H. Matsuzaki, T. Narusawa, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 266, 1324 (2008).
- D. Sekiba, H. Yonemura, T. Nebiki, M. Wilded, S. Ogura, H. Yamashita, M. Matsumoto, J. Kasagi, Y. Iwamura, T. Itoh, H. Matsuzaki, T. Narusawa, K. Fukutani, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 266, 4027 (2008).
- [112] J. Hasegawa, S. Shiba, H. Fukuda, Y. Oguri, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 266, 2125 (2008).
- [113] J. Hasegawa, S. Jaiyen, C. Polee, Y. Oguri, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 269, 3087 (2011).
- [114] J. Hasegawa, S. Jaiyen, C. Polee, N. Chankow, Y. Oguri, Journal of Applied Physics **110**, 044913 (2011).
- [115] T. Ikeda, Y. Kanai, Y. Iwai, T. M. Kojima, K. Maeshima, W. Meissl, T. Kobayashi, T. Nebiki, S. Miyamoto, G. Pokhil, T. Narusawa, N. Imamoto, Y. Yamazaki, Surface and Coating Technology **206**, 859 (2011).
- [116] T. Ikeda, T. M. Kojima, T. Kobayashi, W. Meissl, V. Mackel, Y. Kanai, Y. Yamazaki, Journal of Physics: Conference Series **399**, 012007 (2012).
- [117] T. M. Kojima, D. Tomono, T. Ikeda, K. Ishida, Y. Iwai, M. Iwasaki, Y. Matsuda, T. Matsuzaki, Y. Yamazaki, Journal of the Physicl Society of Japan 76, 093501 (2007).
- [118] D. Tomono, T. Kojima, K. Ishida, T. Ikeda, Y. Iwai, M. Tokuda, Y. Kanazawa, Y. Matsuda, T. Matsuzaki, M. Iwasaki, Y. Yamazaki, Journal of the Physicl Society of Japan 80, 044501 (2011).
- [119] N. Oshima, Y. Iwai, T. I. T. M. Kojima, Y. Kanazawa, M. Hoshino, R. Suzuki,
  Y. Yamazaki, Positron and Positronium Chemistry 607, 263 (2009).

- [121] C. Lemell, J. Burgdörfer, and F. Aumayr, Progress in Surface Science **88**, 237 (2013).
- [122] N. Stolterfoht, Y. Yamazaki, Physics Report 629, 1 (2016)
- F. W. Meyer, C. C. Havener, S. H. Overbury, K. J. Snowdon, D. M. Zehner, W. Heiland, H. Hemme, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B 23, 234 (1987).
- [124] L. Folkerts, S. Schippers, D. M. Zehner, F. W. Meyer, Physical Review Letters 74, 2204 (1995).
- [125] Z. Juhász, B. Sulik, R. Rácz, S. Biri, R. J. Bereczky, K. Tőkési, Á. Kövér, J. Pálinkás, N. Stolterfoht, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 82, 062903 (2010)
- [126] J. Burgdörfer, P. Lerner, and F. W. Meyer, Physical Review A 44, 5674 (1991).
- [127] N. Stolterfoht, V. Hoffmann, R. Hellhammer, Z. D. Pešić, D. Fink, A. Petrov, and B. Sulik, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 203, 246 (2003).
- [128] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z. D. Pešić, V. Hoffmann, J. Bundesmann, A. Petrov, D. Fink, and B. Sulik, Vacuum 73, 31 (2004).
- [129] R. Hellhammer, PhD Thesis, Technische Universitate Berlin, 2006
- [130] R. Hellhammer, D. Fink, and N. Stolterfoht, Book of Abstracts, 16th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions, 53 (2006).
- [131] Z. Juhász, P. Herczku, N. Stolterfoht, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, C. Cserháti, B. Sulik, Nanomaterials and Nanotechnology, elbírálás alatt
- [132] R.T. Rajendra-Kumar, X. Badel, G. Vikor, J. Linnros, R. Schuch, Nanotechnology 16 (2005) 1697–1700.
- [133] I. Rajta, G. A. B. Gál, S. Z. Szilasi, Z. Juhász, S. Biri, M. Mátéfi-Tempfli, and S. Mtéfi-Tempfli, Nanotechnology 21, 295704 (2010).
- [134] H. Masuda and K. Fukuda, Science 268, 1466 (1995).
- [135] H. Masuda and M. Satoh, Japanese Journal of Applied Physics, Part 2: Letters 35, L126 (1996).
- [136] J. Frenkel, Physical Review **54**, 647 (1938).

- [137] S. Kovács, Doktori (PhD) értekezés, Debreceni Egyetem, Debrecen (2017).
- [138] D. Kiss, Á. Horváth, Á. Kiss, Kísérleti Atomfizika, ELTE Eötvös kiadó, Budapest (1998).
- [139] T. Fényes, Atommagfizika, Kossuth Egytemi Kiadó, Debrecen (2005).
- [140] www.simion.com
- [141] A. Báder, L. Sarkadi, Gy. Hegyesi, L. Víkor, J. Pálinkás, Measurement Science and Technology **6**, 959 (1995).
- [142] S. Biri, J. Vámosi, Fizikai Szemle **1994/4** 163 (1994).
- [143] R. Rácz, Doktori (PhD) értekezés, Debreceni Egyetem, Debrecen (2013).
- [144] C. C. Montanari, J. E. Miraglia, Journal of Physics B **45**, 105201 (2012).
- [145] D. Brant, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics 27, 1314 (1983).
- [146] J. A. Tanis, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 10/11, 128 (1985).
- [147] V. V. Afrosimov, Ya. A. Mamaev, M. N. Panov, N. V. Fedorenko, Soviet Physics – Journal of Experimental and Theoretical Physics 28, 52 (1969).
- [148] E. Horsdal Pedersen, L. Larsen, Journal of Physics B 12, 4099 (1979).
- [149] R. D. DuBois, Á. Kövér, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics **40**, 3605 (1989).
- [150] L. Sarkadi, P. Herczku, S. T. S. Kovács, Á. Kövér, Physical Review A -Atomic, Molecular, and Optical Physics **87**, 062705 (2013).
- [151] L. Sarkadi, P. Herczku, S. T. S. Kovács, Á. Kövér, Journal of Physics: Conference Series **488**, 092002 (2014).
- [152] D. Varga, Kandidátusi értekezés, MTA Atomki, Debrecen (1979).
- [153] G. D. Yarnold, H. C. Bolton, Journal of Scientific Instruments 26, 38 (1948).
- [154] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, L. Sarkadi, L. Gulyás, B. Sulik, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics **94**, 012704 (2015).
- [155] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, L. Sarkadi, L. Gulyás, B. Sulik, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics **96**, 032704 (2017).
- [156] P. Herczku, Atomki Annual Report 2010, 55. oldal

- [157] P. Herczku, S. T. S. Kovács, Z. Juhász, L. L. Horváth, F. Gáll, B. Sulik, 5<sup>th</sup> Conference on Elementary Processes in Atomic Systems (CEPAS 2011) Belgrade, Szerbia, Book of Abstracts 80. oldal (2011).
- [158] PET (Mylar) gyártói adalap a DuPont Teijin Films<sup>™</sup> cégtől, www.dupontteijinfilms.com
- [159] PC (Lexan) gyártói adatlap a Sabic Innovative Plastics<sup>™</sup> cégtől, www.sabic-ip.com
- [160] N. Stolterfoht, P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 387, 96 (2016).
- [161] N. Stolterfoht, P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 408, 56 (2017).
- [162] R. Nakayama, M. Tona, N. Nakamura, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, C. Yamada, A. Yamazaki, S. Ohtani, M. Sakurai, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 267, 2381 (2009).
- [163] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Blocking effect on transmission of Ne<sup>7+</sup> ions through nanocapillaries, Journal of Physics: Conference Series 635, 032028 (2015).
- [164] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Sándor, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, közlésre előkészítve
- [165] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, J. Tóth, B. Sulik, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **354**, 71 (2015).
- [166] Y. Yamano, T. Komiyma, M. Takahashi, s. Kobayashi, K. Nitta, Y. Saito, 23rd International Symposium on Discharges and Electrical Insulation in Vacuum (XXIII. ISDEIV), Romania, Bucharest, Book of Abstracts, (2008).

# Az értekezés témakörében megjelent közlemények

### SCI közlemények:

- [1] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, J. Tóth, B. Sulik, *Guiding of Ar<sup>7+</sup> ions through a glass microcapillary array*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **354**, 71 (2015) 1,389<sup>2015</sup>
- [2] **P. Herczku**, Z. Juhász, S. T. S. Sándor, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, közlésre előkészítve (2018)
- [3] N. Stolterfoht, P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Role of conductivity for the production of charge patches by ions guided in capillaries, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 408, 56 (2017) 1,323<sup>2017</sup>
- [4] N. Stolterfoht, P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Long-term stable transmission of 3-keV Ne<sup>7+</sup> ions guided through nanocapillaries in polymers, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 387, 96 (2016) 1,109<sup>2016</sup>
- [5] 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 Ar<sup>7+</sup> ions through dense polycarbonate nanocapillary arrays: Blocking effect and time dependence of the transmitted neutrals, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 279, 177 (2012) 1,266<sup>2012</sup>
- [6] Z. Juhász, P. Herczku, N. Stolterfoht, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, C. Cserháti, B. Sulik, *Time dependence of the ion transmission through nanocapillaries during the discharging process*, Nanomaterials and Nanotechnology, elbírálás alatt (2018) 1,730<sup>2018</sup>
- [7] L. Sarkadi, P. Herczku, S. T. S. Kovács, Á. Kövér, Multiple ionization of rare gases by hydrogen-atom impact, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 87, 062705 (2013) 2,991<sup>2013</sup>

### A tézisek alapjául szolgáló közlemények egyéb folyóiratokban:

- [8] P. Herczu, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Guiding of Ar<sup>7+</sup> ions through a glass macrocapillary array, Journal of Physics: Conference Series 488, 132011 (2014)
- [9] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, N. Stolterfoht, *Conductivity mechanism probed by ion transmission through nanocapillaries during the discharging process*, Journal of Physics: Conference Series 635, 032027 (2015)
- [10] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Blocking effect on transmission of Ne<sup>7+</sup> ions through nanocapillaries, Journal of Physics: Conference Series 635, 032028 (2015)
- [11] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Discharging of inner capillary walls in ion transmission through nanocapillaries, Acta Physica Debrecina XLVIII, 1 (2014)
- [12] 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)
- [13] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, S. Biri, R. Rácz, B. Sulik, Guiding of 3 keV Ar<sup>7+</sup> ions by polycarbonate nanocapillaries and glass microcapillaries, Acta Physica Debrecina XLVI, 57 (2012)
- [14] P. Herczku, B. Sulik, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, N. Stolterfoht, Guided transmission of ins through nanocapillaries: Variations in discharging dynamics, 6<sup>th</sup> Conference on Elementary Processes in Atomic Systems (CEPAS 2014) Szlovákia, Pozsony, 2014. július 9-12. Book of abstracts, 150. oldal
- [15] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, B. Sulik, Guiding of Ar<sup>7+</sup> ions through a highly ordered glass capillary array, 26<sup>th</sup> International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS 26), Magyarország, Debrecen, 2014 júlis 13-18, Book of abstracts, 49. oldal
- [16] L. Sarkadi, P. Herczku, S. T. S. Kovács, Á. Kövér, Single and multiple ionization of rare gases by H<sup>0</sup> impact Journal of Physics: Conference Series 488, 092002 (2014)
- [17] P. Herczku, Z. Juhász, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, J. Pálnkás, B. Sulik, Dynamics of guiding of Ne<sup>7+</sup> and Ar<sup>7+</sup> ions through nano- and microcapillary arrays, 11<sup>th</sup> European Conference on Atoms, Molecules and Photons (ECAMP 2013), Dánia, Aarhus, 2013. június 24-28. Book of abstracts, 50. oldal

[18] Z. Juhász, P. Herczku, S. T. S. Kovács, R. Rácz, S. Biri, I. Rajta, G. A. B. Gál, S. Z. Szilasi, J. Pálnkás, B. Sulik, *Time developmentof guided transmission* of ions and neutral formation in polycarbonate nanocapillaries, 16<sup>th</sup> International Physics of Highly Charged Ions (HCI 2012), Németország, Hidelberg, 2012. szeptember 2-7. Book of abstracts, 270. oldal

### Előadás:

[E1] P. Herczku, Guiding of highly charged ions through nanocapillaries: A self-organizing process, Complexity from quantum systems to emergent behaviour, Physics Lectures 2012, Debrecen, Magyarország, 2012. december 12.

#### A dolgozatomhoz nem kapcsolódó publikációk:

- [N1] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, L. Sarkadi, L. Gulyás, B. Sulik, Dissociative ionization of H<sub>2</sub>O molecule induced by medium energy singly charged projectiles, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 96, 032704 (2017) 2,909<sup>2017</sup>
- [N2] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, L. Sarkadi, L. Gulyás, B. Sulik, Ionization of small molecules induced by H<sup>+</sup>, He<sup>+</sup> and N<sup>+</sup> projectiles: Comparison of experiment with quantum and classical calculations, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics 94, 012704 (2016) 2,765<sup>2015</sup>
- [N3] 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, Anion emission from water molecules colliding with positive ions: Identification of binary and many-body processes, Physical Review A (Rapid Comm.) Atomic, Molecular, and Optical Physics 91, 060701 (R) (2015) 2,765<sup>2015</sup>
- [N4] 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<sup>+</sup>+ Ar collision: The role of dissociative excitation and statistical aspects, Physical Review A Atomic, Molecular, and Optical Physics 89, 062721 (2014) 2,808<sup>2014</sup>
- [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 in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 369, 24 (2016) 1,389<sup>2015</sup>

- [N6] S. T. S. Kovács, P. Herczku, L. Gulyás, Z. Juhász, B. Sulik, Absolute fragmentation cross section mesurements of small molecules induced by H<sup>+</sup> and N<sup>+</sup> impact, Acta Physica Debrecina XLVIII, 100 (2014)
- [N7] S. T. S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, B. Sulik, Fragmentation of H<sub>2</sub>O and CH₄ induced by 650 keV N<sup>+</sup> projectiles, Acta Physica Debrecina XLVII, 87 (2013)
- [N8] S. T. S. Kovács, Z. Juhász, P. Herczku, B. Sulik, A new setup for molecule fragmentation studies and the first results from  $N^+ + H_2O$  collisions, Acta Physica Debrecina XLVI, 87 (2012)