



1949

Mikrofókuszált protonnyaláb terelése szigetelő kapillárisal

Egyetemi doktori (PhD) értekezés

Nagy Gyula

Témavezető:
Dr. Rajta István

Debreceni Egyetem
Természettudományi és Informatikai Doktori Tanács
Fizikai Tudományok Doktori Iskola
Debrecen, 2019

Készült
A Debreceni Egyetem
Fizikai Tudományok Doktori Iskolájának
Fizikai módszerek interdiszciplináris kutatásokban programja keretében
a Magyar Tudományos Akadémia Atommagkutató Intézetében (MTA Atomki).

Ezen értekezést a Debreceni Egyetem Természettudományi és Informatikai Doktori Tanács Fizikai Tudományok Doktori Iskola Fizikai módszerek interdiszciplináris kutatásokban 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, 2019. május 24.

*Nagy Gyula
jelölt*

Tanúsítom, hogy Nagy Gyula doktorjelölt 2012 - 2019 között a fent megnevezett Doktori Iskola Fizikai módszerek interdiszciplináris kutatásokban 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, 2019. május 24.

*Dr. Rajta István
témavezető*

Mikrofókuszált protonnyaláb terelése szigetelő kapillárisal

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

Írta: **Nagy Gyula** okleveles környezetkutató

Készült a Debreceni Egyetem Fizikai Tudományok Doktori Iskolája
Fizikai módszerek interdiszciplináris kutatásokban programja keretében

Témavezető: Dr. Rajta István

A doktori szigorlati bizottság:

elnök:	Dr. Sailer Kornél
tagok:	Dr. Horváth Ákos
	Dr. Biri Sándor

A doktori szigorlat időpontja: 2017. június 29.

Az értekezés bírálói:

Dr.
Dr.

A bírálóbizottság:

elnök:	Dr.
tagok:	Dr.
	Dr.
	Dr.
	Dr.

Az értekezés védésének időpontja: 20.... ..

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés és célkitűzések.....	1
2. Szakirodalmi ismeretek.....	3
2.1. Ion-anyag kölcsönhatások alapvető folyamatai.....	3
2.2. Alkalmazások.....	8
2.3. Ionterelés.....	11
3. Eszközök és módszerek.....	22
3.1. A kísérletekhez használt berendezések és módszerek.....	22
Van de Graaff gyorsító.....	22
Pásztázó ionmikroszkonda.....	25
Részecskedetektálás.....	28
Elektrosztatikus eltérítés.....	30
3.2. Számítógépes módszerek és programcsomagok.....	32
Szimulációs módszerek.....	32
SRIM.....	38
WinTRAX.....	39
4. A tudományos eredmények bemutatása.....	41
4.1. Kísérleti paraméterek.....	41
4.2. A kísérleti elrendezés összeállítása.....	44
Mintapozicionálás.....	45
Bejövő nyalábintenzitás mérése.....	47
Az átvezetett nyalábintenzitás és nyalábenergia mérése.....	48
A nyaláb emissziós szögének és töltésállapotának meghatározása.....	50
Töltések semlegesítése.....	53
4.3. A számítógépes szimuláció kidolgozása.....	54
A 2 dimenziós modell.....	55
A 3 dimenziós modell.....	61
Optimalizálás.....	67
4.4. Az átvitel időfejlődése és az átvitel hatásfokának intenzitásfüggése.....	69
4.5. Az energiaspektrum időfejlődése.....	75
4.6. Az emissziós szög és annak intenzitásfüggése.....	81
4.7. A töltésállapot meghatározása.....	85
4.8. A nyaláb térbeli eloszlása.....	86
5. Zárszó, kitekintés.....	93
6. Összefoglalás.....	94
7. Summary.....	99
8. Publikációk.....	104
9. Köszönetnyilvánítás.....	107
10. Irodalomjegyzék.....	108

1. Bevezetés és célkitűzések

Ionsugárzást kibocsájtó források a XIX. század végétől, a radioaktivitás felfedezésétől kezdve álltak a kutatók rendelkezésére. Ezzel kezdődően az ionanyag kölcsönhatások vizsgálata és megértése rohamos fejlődésnek indult. Marie Curie már 1900-ban azt a hipotézist vetette fel, amely szerint az alfa-részecskék az anyagon áthaladva lelassulnak [1]. Ennek a lefékeződésnek az első kimerítő tanulmányozása Bragg 1905-ös munkájához köthető [2], amelyben már akkor néhány százalékos pontossággal meg tudta mérni az alfa-részecskék behatolási mélységét különböző anyagokba. Később szerteágazó vizsgálatok indultak, amelyek mind az ionok anyagban való lefékeződésének, mind pedig az anyag atomi felépítésének megértéséhez hozzájárultak.

PhD dolgozatom témája egy nemrégiben felfedezett jelenség, amely ionanyag kölcsönhatások következtében alakul ki: az ionok szigetelő kapillárisokkal történő terelése. A folyamat során egy szigetelő anyagú kapillárisba annak nyílásszögénél nagyobb beesési szögben beinjektált ionnyaláb átvezetése történik meg a kapillárison keresztül, úgy, hogy az átvezetett ionok megtartják mind az eredeti kinetikus energiájukat, mind pedig a töltésállapotukat. Ezt a kapilláris belső falán az ionokkal történő kölcsönhatások során felépülő töltésfoltok teszik lehetővé, mivel azok sztatikus taszítóerőt jelentenek a később beérkező ionoknak, tehát eltérítik, elterelik a nyalábot, mielőtt az ütközni tudna a kapilláris belső falával. A jelenséget először 2002-ben írták le, majd sok kutatócsoport kezdett el foglalkozni az effektussal. Hamarosan meg is jelentek az első alkalmazások lehetőségeivel, de az alap kutatások is folytatódtak, és folytatódnak várhatóan mindaddig, míg a rutinszerű alkalmazási formák ki nem fejlődnek. Az ionok terelésének vizsgálata tehát dinamikus fejlődő tudományterületté nőtte ki magát.

Én is egy ilyen kutatócsoport munkájába kapcsolódtam be az MTA Atomki PhD hallgatójaként: szigetelő kapillárisal terelt gyors, mikrofókuszált protonnyaláb viselkedését próbáltuk meg feltárni. A motivációnkat az adta, hogy a MeV energiatartományban direkt bizonyítékokkal még senki nem szolgáltat az ionterelés létezésére. Bár többen is vizsgálták, sőt, alkalmazták is

már az ionterelést ebben az energiatartományban, mindig tapasztaltak valamilyen szóródási folyamatot vagy csatornahatást, tehát nem lehetett tisztán terelődésről beszélni. Ennek oka a nagy nyalábenergia eltérítéséhez szükséges nagy elektromos potenciál elérésének nehézsége.

Először egy olyan anyagot kellett tehát keresnünk, amely kellően sok elektromos töltést tud felhalmozni, azaz jó szigetelőképeséssel rendelkezik. Ezt követően pedig meg kellett tervezni egy olyan vizsgálat-sorozatot, amelyben minden olyan tulajdonságát meghatározzuk a kapillárison átjutó nyalábnak, amelyből már egyértelműen bizonyítható vagy cáfolható az ionterelés megléte. Ezen tulajdonságok között olyanok is vannak, amelyeket már korábban a kisebb energiás tartományban mások kimutattak, de a céljaink között olyan folyamatok vizsgálata is szerepelt, amelyet más kutatócsoportok még soha nem figyeltek meg.

A vizsgálatainkat először kísérleti módszerekkel kezdtük, majd később a számítógépes fizikához fordultunk, és szimulációkkal egészítettük ki az addigi eredményeket. A szimulációkkal a kísérletek reprodukálásán és értelmezésén túl új jelenségeket is megjósoltunk, de ezt követően már csak egy esetben végeztünk kísérletet annak kimutatására. Azt lehet tehát mondani, hogy doktori munkám során a kísérletes és szimulációs munka időben elkülönült egymástól. A dolgozat felépítése szempontjából azonban logikusabbnak tűnt az időrend helyett a vizsgált folyamatok szerinti csoportosítás. Ennek megfelelően az egyes alfejezetekben az adott témához kapcsolódó kísérleti és szimulációs eredményeket együtt mutatom be, de természetesen utalok az időbeliségre.

A dolgozat felépítése a következő: először bemutatom a doktori munkámhoz kapcsolódó elméleti ismereteket, benne a MeV energiájú ionok anyagokkal való fontosabb kölcsönhatásait, és az ionterelés fontosabb szakirodalmi hátterét. Ezt követően bemutatom a munka során használt fontosabb kísérleti berendezéseket és technikákat, majd a felhasznált számítógépes programokat és az általam alkalmazott számítógépes módszereket ismertetem. Ezt követi a doktori munkám során elvégzett munka és tudományos eredményeim bemutatása. Ide soroltam a kísérletekhez használt mérési elrendezés kialakítását és a szimulációkhoz használt kód fejlesztését is. A dolgozatot végezetül zárszó, majd magyar és angol nyelvű összefoglalás zárja.

2. Szakirodalmi ismeretek

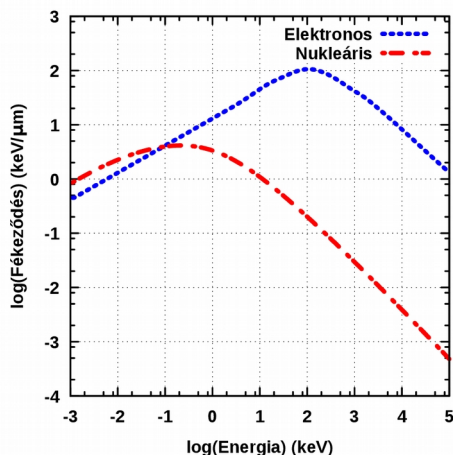
Ebben a fejezetben áttekintem a dolgozat megértéséhez feltétlenül szükséges szakirodalmi ismereteket. Kezdem a MeV energiájú ionok anyaggal való alapvető kölcsönhatásainak kapcsolódó fejezeteivel, majd bemutatom a kutatómunkámhoz köthető alkalmazások alapjait. Az ionterelésről szóló szakirodalom összefoglalása külön alfejezetet képez.

2.1. Ion-anyag kölcsönhatások alapvető folyamatai

Lefékeződés, hatótáv

Az anyagban haladó ionok a pályájuk során az elektronfelhővel és az atommagokkal kölcsönhatva elveszítik mozgási energiájukat, lefékeződnek. Ezt az egységnyi úthossz során leadott dE/dz energiával definiálják, és fajlagos energiaveszteségnek, vagy az anyag fékezőképességének nevezik. Noha szigorúan véve a MeV energiatartományban is jelen van az atommagokkal történő rugalmas ütközések miatti nukleáris energiaveszteség, a kis ütközési valószínűség miatt ez többnyire elhanyagolható az elektronokkal történő ütközés következtében kialakuló elektronos lefékeződéshez képest (2.1.1. ábra) [3]. A részecske teljes energiavesztését a behatolási mélység függvényében az úgynevezett Bragg-görbével lehet ábrázolni. Az energiaveszteségnek a pálya vége előtti maximumát Bragg-csúcsnak nevezik.

A MeV energiájú könnyű ionok elektronos energiaveszteségét kis- és nagyenergiás tartományra lehet szétbontani. A két tartományt elválasztó határvonalat az az energia adja, amelyen a mozgó lövedékion sebessége megegyezik a Bohr-sebességgel, azaz az alapállapotú hidrogénatom 1s elektronhéján található elektron sebességével. Ez a sebesség $v_o = e^2/\hbar = 2,2 \cdot 10^6 \text{ m/s}$, ami ^1H ion esetében 25 keV mozgási energiának felel meg, azaz a MeV energiájú protonok fékeződését a nagyenergiás tartomány írja le. Ez szemléletesen azt jelenti, hogy a gyorsan mozgó lövedékion számára az atomi elektronok statikusnak tűnnek. Az energiavesztés ebben a tartományban a céltárgy kémiai állapotától függetlennek tekinthető.



2.1.1. ábra. Protonok nukleáris és elektronos energiavesztése az energia függvényében, teflonban. Látható, hogy az elektronos energiavesztés csak igen kis energiánál válik összemérhetővé a nukleáris energiavesztéssel.

A nagyenergiás tartományban a nehéz töltött részecskék elektronokkal történő ütközések miatt bekövetkező energiavesztését először Bohr származtatta, klasszikus módszert alkalmazva. Később ezt Bethe és Bloch kiterjesztette nem-relativisztikus, kvantum-mechanikai megközelítést alkalmazó kifejezésre, amit a róluk elnevezett Bethe-Bloch formula ad meg [4]:

$$-\frac{dE}{dz} [\text{MeV} \cdot \frac{\text{cm}^2}{\text{g}}] = 4 \pi \frac{Z_1}{A} N_A \left(\frac{e^2}{4 \pi \epsilon_0} \right)^2 \frac{Z_2^2}{m_e v^2} \ln \frac{2 m_e v^2}{I}, \quad (2.1.1.)$$

ahol Z_1 és A a közeg atomjainak rendszáma és tömegszáma, N_A az Avogadro-szám, e az elemi töltés, ϵ_0 a vákuum permittivitása, Z_2 a lövedék rendszáma, v a sebessége, m_e az elektron tömege, I pedig az átlagos elektron-gerjesztési energia, amelynek közelítő empirikus értéke

$I \approx 10Z [\text{eV}]$, ha az elektronhég felépítése és a kötési energia miatti változásokat figyelmen kívül hagyjuk. Ezt követően még Bethe tovább alakította a formulát, és korrekciókkal egészítette ki azt. Figyelembe vette

- 1) a relativisztikus lövedék-sebességek hatását;
- 2) a K-hég korrekcióval a lassuló lövedék esetében az erősen kötött elektronok lefékeződésben játszott csökkenő szerepét;

- 3) végül pedig egy polarizációs (sűrűség) korrekcióval a folyadékok és szilárd anyagok dipólus-torzulásai miatt bekövetkező Coulomb-erő csökkenést.

Azt a rétegvastagságot, amely alatt a részecske a teljes energiáját elveszíti, behatolási mélységnek vagy hatótávolságnak (*penetration depth, range*) nevezik. Ez nehéz töltött részecskék esetén a közel egyenes vonalú pálya miatt a részecske által megtett úthosszal közel megegyezik, azaz

$$R = \int_0^{E_0} \left(\frac{dE}{dz} \right)^{-1} dE, \quad (2.1.2.)$$

ahol E_0 a lövedék ion közegbe belépéskori mozgási energiája.

Az energiavesztési (elektronokkal történő ütközési) folyamatok statisztikus jellege miatt az anyagba belépő nyaláb már egy kicsi dz vastagságú rétegen áthaladva is energiakiszélesedést szenved (*energy straggling*). Mivel a különböző energiájú részecskéknél ugyanabban az anyagban eltérő a behatolási mélységük, ezért az energia kiszélesedés azt eredményezi, hogy az egyedi részecskék behatolási mélysége sem egyforma, hanem egy várható érték körül ingadozik. Ezt hívják longitudinális szóródásnak vagy longitudinális kiszélesedésnek (*longitudinal straggling*).

A fékeződési, energialeadási folyamatoknál gyakran találkozni a lineáris energiaátadás (*Linear Energy Transfer, LET*) fogalmával. Ez a részecske által a közegnek az egységnyi úthosszon átadott energiát jelenti, ami a fékeződéstől akkor különbözik, ha a lefékeződés során keletkező elektromágneses sugárzás kilép az anyagból. Nehéz töltött részecskékre (ionokra) ez nem teljesül, ugyanis az elektronokkal történő egyedi ütközésekben az ionok mozgási energiájának csak kis hányada adódik át, így a képződő kis energiájú másodlagos sugárzás az ion pályája mentén fog elnyelődni. Ezért ionok esetében a fékeződés és a LET értéke gyakorlatilag megegyezik.

Töltéscsere

Az anyagban haladó ionok töltésállapota – a bejövő nyaláb töltésállapotától függetlenül – a nyaláb sebességére és az anyagra jellemző módon alakul. A fékező anyagba belépő ionok először egy nem-egyensúlyi szakaszban folyamatos töltéscserélő (elektron-vesztő és -felvevő) folyamatokon

mennek keresztül. Megfelelő vastagság megtétele után kialakul a közegben az adott ionra adott sebességnél jellemző egyensúlyi töltésállapot-eloszlás [5].

A nagyenergiás tartományban a nagy sebesség következtében a lövedékion összes elektronja lefosztódik, tehát egy teljesen ionizált, $Z \cdot e$ nagyságú pozitív töltéssel rendelkező részecskeként kezelhető. Ezzel szemben, a kisenergiás tartományban a lövedék nincs teljesen lefosztott állapotban, hanem az elektron-felvételek és -leadások sorozata miatt egy átlagos töltés jellemzi, ami így kisebb, mint $Z \cdot e$ [3]. Ez az átlagos töltés a sebességgel csökken, a pálya vége felé már a lövedék ionok nagy része semleges állapotban van jelen.

Szóródás, kiszélesedés

A Rutherford-féle atommodellt a Geiger és Marsden szórási kísérletében tapasztaltakra alapozva alkotta meg Ernst Rutherford [4]. Eszerint az atom tömegének legnagyobb része a pozitív töltésű atommagban koncentrálódik, amelynek a sugara 10^{-14} m nagyságrendű. Az elektronok körülötte, egy gömbszerű felhőben vannak elosztatva, amelynek sugara pedig 10^{-10} m nagyságrendbe esik. Ez a méretkülönbség magyarázza egyébként azt, hogy miért valószínűtlen az atommagokkal történő ütközések miatti energiavesztés a lefékeződés folyamatában. Mindazonáltal, az atommagok Coulomb-terében repülő lövedékion rugalmas szóródási folyamaton megy keresztül. A kölcsönhatások során fellépő irányváltoztatások statisztikus jellege miatt a beérkező nyaláb oldalirányú kiszélesedést (*lateral straggling*) szenved.

A Rutherford-szóródás kinematikája tehát azon alapul, hogy a lövedék részecske és a target atommag között – mint két, pontszerűnek feltételezett pozitív töltés között – Coulomb-kölcsönhatás lép fel. A lövedék ennek következtében hiperbolapályát ír le, aminek a külső fókuszpontjában található a szóró atommag. A kölcsönhatás egyik fontos paramétere a b ütközési-, vagy impakt-paraméter (*impact parameter*), ami a lövedék eredeti irányvonalának (a hiperbola bejövő részecskeirány felőli érintőjének) az atommagtól mért távolsága. Nagy impakt paraméter esetén az eltérülés szöge kicsi lesz, kis impakt paraméter esetén pedig nagy. A másik jellemző paraméter a D karakterisztikus szórási távolság, ami a legkisebb megközelítési távolság (*distance of closest approach*) a lövedékion és a szóró atommag között $b=0$

impakt paraméter (180°-os szóródás) esetén. Értéke $D = \frac{zZe^2}{4\pi\epsilon_0 E_0} \frac{1}{E_0}$, ahol z és Z a lövedék és a szóró atommag rendszáma, e az elemi töltés, ϵ_0 a vákuum permittivitása, E_0 pedig a lövedék kiindulási mozgási energiája. Ha az ütközés során a legkisebb megközelítési távolság kisebb, mint a céltárgy atommagjának sugara, $D < R_{\text{atommag}}$, akkor a lövedék „behatol” az atommagba, a szóródás rugalmatlan lesz.

Megadható a legkisebb és a legnagyobb szóródási szög, amely alatt és fölött a Rutherford-szórás hatáskeresztmetszete telítésbe megy, illetve levágást mutat [4]. Kis szögeknél (nagy impakt paramétereknél) a hatáskeresztmetszet az elektronfelhő által árnyékolt Coulomb-potenciál (Thomas-Fermi potenciál) miatt nem tud tovább növekedni. Nagy szögeknél, mivel a pontszerűnek feltételezett részecskékkel szemben az atommag valójában egy véges mérettel rendelkezik, ezért a hatáskeresztmetszet nem fog tovább csökkenni. A formulák részletes levezetése nélkül, a minimum szóródási szög értéke $\theta_{\min} = D/a_{TF}$. Az egyenletben $a_{TF} \approx a_0 Z^{-1/3}$ a Thomas-Fermi atomsugár ($a_0 = 0,5292 \text{ \AA}$ a Bohr-sugár). A maximális szóródási szög értéke $\theta_{\max} \approx \frac{\hbar}{pR}$, ahol p a lövedék lendülete, R pedig a target atommag sugara. Ezekből a mennyiségekből megadható az egyedi szóródási szögek négyzetének átlagos értéke: $\overline{\theta^2} \approx 2\theta_{\min}^2 \ln \frac{\theta_{\max}}{\theta_{\min}}$.

Az anyagban haladó egyedi részecske nagyszámú kis θ szöggel jellemezhető szóródási folyamaton megy keresztül, így egy dz rétegvastagság után már egy kumulatív Θ szög jellemzi, ami n darab kisszögű eltérés szuperpozíciójából tevődik össze. A kumulatív négyzet átlagértéke

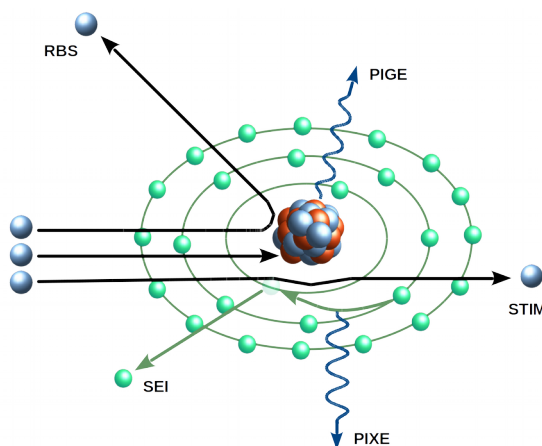
$$\overline{\Theta^2} = n\overline{\theta^2} = \pi\rho \frac{N_A}{A} \frac{D^2}{\theta_{\min}^2} t = 2\pi\rho \frac{N_A}{A} \left(\frac{zZe^2}{4\pi\epsilon_0 E_K} \right)^2 \ln \frac{1.4a_0}{R_0(AZ)^{1/3}}, \quad (2.1.3.)$$

ahol ρ a közeg sűrűsége, t a rétegvastagság, N_A az Avogadro-szám, A a közeg tömegszáma, z és Z a lövedék és a közeg rendszáma, e az elemi töltés, ϵ_0 a vákuum permittivitása, E_K a lövedék kinetikus energiája, a_0 a Borh-sugár, $R_0 \approx 1,25 \text{ fm}$ pedig a magsugár állandó.

2.2. Alkalmazások

Analitika

Az ion-anyag kölcsönhatások kimerítő tanulmányozásának eredményei ma már sikeresen alkalmazhatók a tudomány és az ipar különböző területein. Manapság a MeV energiájú ionnyalábok és a pásztázó ionmikroszondák egyik legfontosabb felhasználási területe az ionnyalábos (mikro)analízis (*Ion Beam Analysis, IBA*). Bár PhD munkám során nem foglalkoztam szűk értelemben vett ionsugaras analitikával, mégis, a kísérleti munka legkülönbözőbb fázisaiban szükségem volt valamilyen, legalábbis kvalitatív értelemben vett analízisre. Ezért elengedhetetlen, hogy ismertessem a dolgozat szempontjából releváns nukleáris analitikai technikákat. A 2.2.1. ábrán bemutatom néhány fontosabb IBA módszer elvi működését.



2.2.1. ábra. Néhány fontosabb ionnyaláb-analitikai technika sematikus rajza. A rövidítések magyarázata megtalálható a szövegben.

Minden ionnyaláb-analitikai módszer alapja, hogy valamilyen, néhány MeV energiára gyorsított bombázóion által keltett folyamatot detektálnak, és ebből következtetnek a minta mennyiségi és/vagy minőségi összetételére. A módszerek sokszínűsége lehetővé teszi, hogy a legkülönbözőbb analitikai feladatokra megoldást nyújtsanak, úgy mint nyomelemek kimutatása, rétegszerkezet vizsgálat, sűrűségmeghatározás, kristályszerkezet vizsgálat, vagy éppen felületi topográfia letapogatás. Közös jellemzőjük, hogy általában nem igényelnek különös mintaelőkészítést, makroszkopikus skálán

roncsolásmentesnek tekinthetők (egy statisztikusan értelmezhető spektrum begyűjtéséhez szükséges ionfluens a roncsolás szempontjából általában elhanyagolható), illetve, hogy általában multieleemes technikák, azaz egyszerre sok elemről gyűjthető információ (energiadisziperzív módszer). Ráadásul lehetőség van az egyes technikákat párhuzamosan, egymással kombinálva alkalmazni, fókuszált nyalábbal alkalmazva pedig akár szub-mikrométeres laterális felbontással lehet térképezni.

Az egyik leggyakrabban használt ionnyaláb-analitikai módszer a részecskeindukált röntgenemissziós analízis (*Particle Induced X-ray Emission, PIXE*). Itt a bombázó ion a minta atomjainak egy belső elektronhéját ionizálja, és a vakancia külső héjakról történő rekombinációja során kibocsátott karakterisztikus röntgensugárzást detektálják. Bombázó ionként leggyakrabban 2 – 3 MeV energiájú protonokat használnak, mivel ennek széles elemtartományban nagy a röntgengerjesztési hatáskeresztmetszete. A PIXE módszer egyik legnagyobb előnye, hogy igen kicsi a detektálhatósági határ, így ppm koncentráció-tartományban is kimutathatók vele elemek.

Másik széleskörűen használatos technika a Rutherford-visszaszórásos spektrometria (*Rutherford Backscattering Spectroscopy, RBS*). Itt a minta atommagjairól rugalmasan visszaszóródott bombázó részecskék, leggyakrabban He^+ ionok energiavesztéséből lehet következtetni a minta összetételére és mélység szerinti rétegszerkezetére.

A pásztázó transzmissziós ionmikroszkópia (*Scanning Transmission Ion Microscopy, STIM*) a vékony mintán keresztüljutó bombázórészecskék energiavesztéséből következtet a minta laterális sűrűségkülönbségeire. Ha a detektor a nyalábirányhoz képest kellően nagy szögben van elhelyezve (sötét látómezejű, vagy *off-axis STIM*) akkor a nagyáramú technikákkal (PIXE, RBS) kombinálható, ha pedig a detektor a nyaláb tengelyében van (világos látómezejű, vagy *on-axis STIM*) akkor a maximálisan használható áram korlátozott (fA tartomány), cserébe viszont egy nagyságrenddel jobb laterális feloldás érhető el.

A fentiekén kívül még gyakran alkalmazzák a részecskeindukált gammaemissziós analízist (*Particle Induced Gamma Emission, PIGE*) és a szekunderelektron térképezést (*Secondary Electron Imaging, SEI*), de számos

egyéb technika létezik, melyek mindegyike megtalálja a maga alkalmazási területét. További jó összefoglalás található a [6] hivatkozásban.

Litográfia

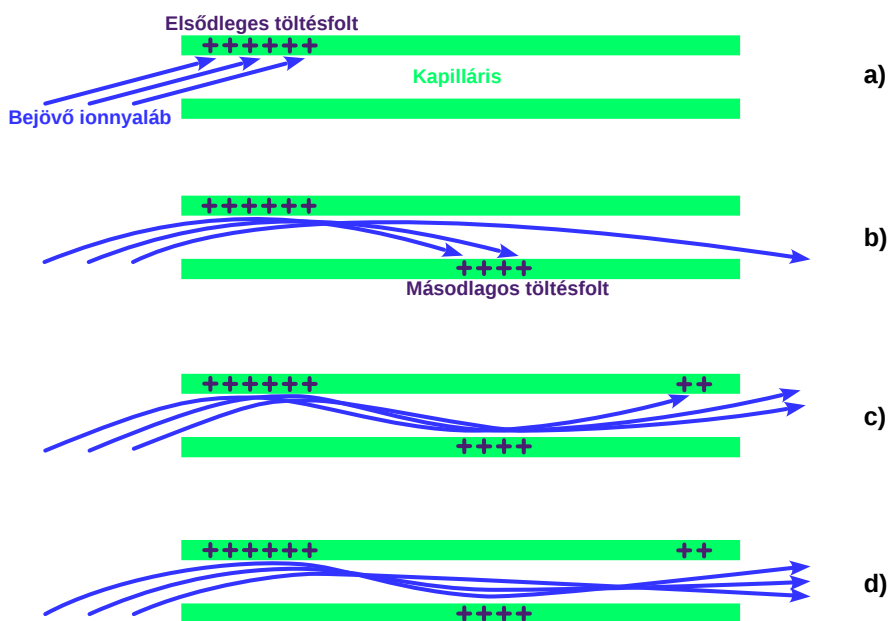
Bár e dolgozat témájához nem kapcsolódik, PhD munkámmal párhuzamosan végzett kutatómunkám másik iránya az ionnyalábokkal végzett litográfia témaköréhez kapcsolódik, ezért néhány szót mindenképpen érdemes szólni róla. A litográfias technikák alapja, hogy valamilyen alkalmas anyagon (reziszt) a bejövő sugárzás egy primer roncsolási képet hoz létre. Ezt bizonyos esetekben közvetlenül is alkalmazni lehet, például egy optikai anyagban végbemenő optikai úthossz-változást azonnal ki lehet használni diffrakciós rácsok létrehozására. Az is lehetséges, hogy a sugárzás hatását a reziszt utólagos kezelésével lehet felhasználhatóvá tenni, például ha a besugárzás helyén megváltozott szelektív oldhatóságot akarjuk kihasználni oldószeres maratással előhívott 3D struktúrák kialakítására.

Ha a bejövő sugárzás néhány MeV energiájú fókuszált ionnyaláb, amelyet a minta felületén pásztázva direkt-írásos litográfias technikaként alkalmaznak, akkor a módszert protonnyalábos mikromegmunkálásnak vagy protonnyalábos írásnak (*Proton Beam Writing, PBW*) nevezik. Ha a besugárzáshoz nehezebb ionokat használunk (pl. hélium, nitrogén, stb.), akkor is használható a PBW angol rövidítés, de ekkor a jelentése *Particle Beam Writing*.

A PBW kutatási munkákat alap- és alkalmazott kutatási fázisra lehet szétbontani. Az első a használni kívánt rezisztanyag ionsugárzásra adott válaszát vizsgálja meg a besugárzás paramétereinek (pl. a rezisztrel közölt fluens) függvényében. A második fázis az elsőben meghatározott összefüggéseket használja fel technikailag is alkalmazható mikro- és nanostruktúrák létrehozására. A PBW technikát, illetve néhány alap- és alkalmazott kutatási munkáját mutatja be a [7] hivatkozás.

2.3. Ionterelés

Stolterfoht és munkatársai 2002-ben publikálták munkájukat, amelyben 3 keV energiájú Ne^{7+} ionok átjutását tanulmányozták polietilén-tereftalát (PET) fóliába nyom-maratási technikával készített nanokapilláris kötegen keresztül [8]. Kísérleteiket eredetileg magasan gerjesztett Rydberg-atomok spektroszkópiájának céljából végezték, és a kapillárisokon átjutó nyaláb szögeloszlását vizsgálták. Közben azt a váratlan megfigyelést tették, hogy az átjutó ionok nagy része a kapillárisok geometriai nyílásszögénél jóval nagyobb beesési szög ellenére is megőrzi eredeti töltésállapotát. A jelenséget a kapillárisok belső felületén végbemenő, önszerveződő feltöltődési folyamatnak tulajdonították (2.3.1. ábra), és ionterelésnek (*ion guiding*) nevezték el. Ez a munka jelenti az ionterelődési kutatások kezdetét.



2.3.1. ábra. Az ionterelődéssel kialakulásának sematikus rajza. **a)** A bejövő nyaláb először egy elsődleges töltésszételést épít fel a kapilláris egyik oldalán. **b)** Az elsődleges töltésszételést a nyaláb egy részét átereli a kapillárison, a másik részét pedig a szemközti oldalra irányítja, ahol elkezd felépülni egy másodlagos töltésszételést. **c)** A másodlagos töltésszételést segítségével a nyalábnak már egy nagyobb hányada tud átjutni a kapillárison, közben a kilépés szöge változik. További töltésszételések analóg módon felépülhetnek, melyek helye és erőssége is változik. **d)** Beáll az egyensúlyi állapot, a kilépés szöge a kapilláris tengelyével közel párhuzamos.

Az azóta eltelt idő alatt sok kutatócsoport foglalkozott a témával, és az ionterelés számos aspektusát megvizsgálták. A legjelentősebb ilyen csoportok név szerint is említést érdemelnek. Az egyik Nikolaus Stolterfoht nevéhez köthető (Helmholtz-Zentrum Berlin), aki a legelső, fentebb bemutatott Physical Review Letters publikáció első szerzője, és azóta is számos nagy hatású munka meghatározó szereplője. Egy másik csoport a Bécsi Műszaki Egyetemen (TU-Wien) tevékenykedik, nekik elsősorban az elméleti munkájuk jelentős (Cristoph Lemell és munkatársai). Ezen kívül fontos megemlíteni a japán RIKEN intézetben működő kutatócsoportot (Tokihiro Ikeda, Takao M. Kojima és munkatársaik), akik számos Applied Physics Letters publikációval elsősorban a kísérleti, gyakorlati oldalt erősítik.

A publikált munkák jelentős része megemlíti, hogy a jelenséget gyakorlati alkalmazhatósága miatt vizsgálják. Mindazonáltal elmondható, hogy az iontereléssel kapcsolatos cikkek többsége alap kutatás jellegű, mivel az alapfolyamatok megértése elengedhetetlen a jelenség kihasználásának tervezhetősége szempontjából. Az ionterelésről szerzett eddigi ismereteinket az elmúlt években két igen jelentős áttekintő cikk is kimerítően összefoglalta [9], [10], de ezeken kívül is született még kisebb alfejezetet tárgyaló áttekintő publikáció, például a makrokapillárisokkal történő ionterelésről [11]. A Debreceni Egyetemen két PhD dolgozat is készült a témában [12],[13]. A következőekben áttekintem az ionterelés szakirodalmának fontosabb, és a PhD munkám szempontjából releváns fejezeteit.

Az ionterelés általános folyamata

A bejövő nyaláb tengelye a kapilláris tengelyével Ψ szöget zár be. Ha ez a szög nagyobb, mint a kapilláris átmérője és hossza által meghatározott geometriai nyílásszög, $\Psi > \arctan(d/l)$, akkor a rendszerre teljesül a geometriai átlátszatlanság feltétele (valójában az ionokra ható tükröltés miatt $\arctan(d/l)$ -nél kisebb beesés esetén is már teljesülhet a geometriai átlátszatlanság). Következésképpen, a beérkező nyaláb nekiütközik a kapilláris belső felületének. Fontos megjegyezni, hogy lassú, nagy töltésű ionok (*Highly Charged Ions, HCI*) töltéscseréje már az ütközés előtt megtörténik, amennyiben az ion a felületet a kritikus elektronbefogási távolságnál jobban megközelíti

($R_c = \sqrt{2Q/W}$ [a. u.] , ahol Q az ion töltése, W pedig a kilépési munka) [14].

A töltéscsere miatt a felület elektromosan töltötté válik, aminek következtében a kapillárisban egy E elektromos térerősség épül fel. Ez az elektromos tér fogja a később érkező ionokat a kapilláris kijárata felé irányítani, még mielőtt azok ütközni tudnának a belső felülettel, vagy a töltésátadás le tudna játszódni. A folyamat dinamikusan fejlődik ki: az egyre növekvő tér a beérkező ionok egyre nagyobb hányadát tereli át a kapillárison, azaz az átviteli hatások az idő (illetve a beinjektált töltésmennyiség) előrehaladtával növekszik. Ütközések, illetve töltéscsere hiányában a kapillárisból kijövő ionok megtartják mind az eredeti töltésállapotukat, mind pedig a kiindulási mozgási energiájukat. Természetesen semleges atomok is jelen lehetnek az átvezetett nyalámban, mivel a bejövő részecskék egy része továbbra is elveszítheti töltését (a köztes töltésállapotok megjelenésének valószínűsége elhanyagolható) [15]. Ezek szintén időfejlődést mutatnak, de a telítési intenzitásuk hamarabb kialakul, mint az ionoké. Ezen kívül pedig még UV-fotonok keletkezését is kimutatták [16].

Az ionokra ható Coulomb-erők több forrásból tevődnek össze. A kapilláris belső falára lerakott és dinamikusan mozgó töltéscsoportok jelentik ezeknek az erőknek az elsődleges forrását, de jelen van a mozgó lövedékion saját tükörtöltése által keltett vonzó erő, illetve nanokapilláris kötegekben a szomszédos kapillárisokban lerakott töltések által keltett kollektív erők is.

A kapilláris belső falán felhalmozódó Q töltésmennyiség a szigetelő anyag kicsi, de véges nagyságú vezetőképessége miatt a földpotenciálú elektródák felé folyik. Ez egy lassú, töltésátrendeződéssel járó folyamat, amelyet az irodalom önszerveződő jelenségként tart számon. A falon felgyülemelő töltésmennyiség (potenciál) növekedésével az elfolyó áram is növekszik, a terelés hatásokának növekedése miatt a falra lerakódó áram pedig csökken az idővel, így az aktív folyamat addig tart, amíg – optimális körülmények között – a kapilláris falára lerakódó és az arról elfolyó áram

között egy dinamikus egyensúly áll be, azaz
$$\frac{dQ(t)}{dt} = I_{\text{bejöv}\ddot{o}} - I_{\text{átjut}\ddot{o}} - I_{\text{elfoly}\ddot{o}} = 0$$

nem lesz.

Az ionterelés tulajdonságait számos paraméter határozza meg. Ide tartozik, hogy csak a legfontosabbakat említsem, a kapilláris mérete [17], alakja [18], anyaga [10], illetve a bejövő nyaláb energiája [19], intenzitása [20] és beesési szöge [21]. Egy adott rendszerre (paraméterekre) jellemző fontos mennyiség a Ψ_C kritikus terelési szög (*guiding angle*), amelynél az átvezetett nyaláb intenzitása a bejövő nyalábnak e -ad részére csökken. HCI nyaláboknál

értékét az $I_\Psi = I_0 \cdot \exp\left(-\frac{\sin^2 \Psi}{\sin^2 \Psi_C}\right)$ összefüggés adja [10], amelyben I_Ψ és

I_0 az átjutó nyaláb intenzitása egy adott Ψ dőlésszögnél és 0° -nál.

Nanokapillárisok

Az ionterelési vizsgálatok kezdeti időszakában vékony polimer fóliákba maratott nanokapilláris kötegeket használtak mintának. A fóliák bejárat felőli felszíne vékony vezetőréteggel van bepárologatva, hogy a ráeső nagy nyalábinszint ne okozzon a felületen feltöltődést. Így csak a kapillárisokba bejutó, jóval kisebb nyalábfrakció okoz töltődést, és csak a kapillárisok belsejében. A legelső ilyen fólia PET volt [8], de hamarosan új anyagokkal is elkezdtek kísérletezni (polikarbonát [22], SiO_2 [23], Al_2O_3 [24]). Számos anyagra, kapilláris méretre illetve kapilláris-sűrűsége meghatározták a jellemző mennyiségeket, különböző nyalábinszinteket, nyalábergiákat és beesési szögeket használva.

A nanokapillárisokkal végzett kísérletek és a különböző szimulációk számos alapfolyamatra derítettek fényt [9],[10]. Ennek köszönhetően a nanokapilláris kötegekben lejátszódó ionterelési mechanizmus ma már elég jól értett folyamat.

Terelés makrokapillárisokkal

A makrokapillárisokkal történő terelés a potenciális technikai alkalmazások miatt igen hamar jelentős érdeklődésre tett szert. A makrokapillárisok – szemben a nanokapilláris fóliákkal – egyedi kapillárisok, belső átmérőjüket tekintve tipikusan a néhány száz mikrométer nagyságrendbe esnek, bár az irodalom a nano- és makrokapillárisok közti határvonalat

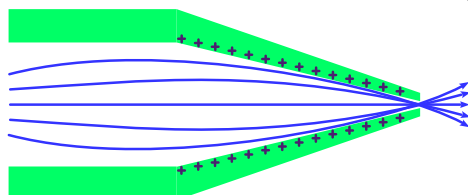
$d=1\mu\text{m}$ -nek definiálja [9]. Alakjukat tekintve lehetnek egyenesek vagy hajlítottak [25],[26], illetve egy speciális altípust képeznek a csúcsos végű kapillárisok. Anyaguk általában üveg, de teflon makrokapillárisokkal [25] is végeztek kísérleteket.

A hengeres, egyedi üveg makrokapillárisokban a nanokapillárisokhoz hasonló, önszervező feltöltődési folyamatnak tulajdonított stabil tereléses átvitelt figyeltek meg Bereczky és munkatársai [27]. A döntési szöveget széles tartományban változtatták, és a kijövő nyaláb iránya a döntési szöggel minden esetben megegyezett. Az átvezetett nyaláb szögeloszlása pedig gyakorlatilag megegyezett a bejövő nyalábéval. Ugyanilyen üvegkapilláris mintával sikeresen állítottak elő mikrométerű HCI nyalábot is [28]. Ugyanez a csoport az anyagok vezetőképességnek hőmérsékletfüggését használta ki az ionterelés tulajdonságainak szabályozására. Először egy olyan mintatartót fejlesztettek, amellyel a kapilláris minta hőmérséklete tág tartományban finoman hangolható volt [29], majd kimutatták, hogy a hőmérséklet, ezáltal a szigetelő anyag vezetési tulajdonságainak változtatása miként hat az ionterelési tulajdonságokra. Megállapították, hogy a kritikus terelési szög a hőmérséklet függvényében változik [30].

Az elvékonyodó, csúcsos végű (*tapered*) kapillárisok az egyedi makrokapillárisok egy speciális ágát képviselik. Alakjuk alapján lehetnek kúposak (*conical*), amelyben a csúcsosodó rész közel lineáris, és tölcsérszerűek (*funnel shaped*), ahol pedig a csúcsot exponenciális alakú görbével lehet közelíteni. Közös jellemzőjük, hogy a belépő oldal néhány száz mikrométer belső átmérőjű, amely egy kezdeti hengeres szakaszt követően fokozatosan elvékonyodó szakaszba megy át, így a kilépő oldalon már tipikusan néhány – néhány tíz mikrométer az átmérő, de néha a száz nanométeres nagyságrendbe esik. Elkészítésük hengeres üvegkapillárisból történik: melegítéssel lágyítják, majd a kapilláris végét meghúzzák. A pontos alakot a melegítés hőmérsékletével és a húzóerő nagyságával szabályozzák. Fontos tudni, hogy a különböző geometriák különböző terelési tulajdonságokkal rendelkezhetnek, például az is lehetséges, hogy azonos körülmények között kúpos kapillárisal stabil átvitel, tölcsér alakúval pedig blokkolódás tapasztalható [18].

Bár megállapították, hogy a csúcsos kapillárisok átviteli hatásfoka oldalra döntés esetén maximumot mutat [31], esetükben a kapillárist általában

koncentrikusan állítják a nyalábbal, de a kapilláris alakja miatt a geometriai átvitel itt is erősen korlátozott. A kialakuló tér a koncentrikus beállítás során ideális esetben tengelyesen szimmetrikus, így a csúcsos végű kapillárisokkal az Einzel-lencsékhez hasonló fókuszáló hatás érhető el [32] (2.3.2. ábra).



2.3.2. ábra. Az ionterelés kihasználása csúcsos végű kapillárisokban a nyalábsűrűség növelésére.

Erre a fókuszáló tulajdonságra már igen korán, egy 2003-ban publikált munkában felfigyeltek: 4 nagyságrend nyalábsűrűség növelést értek el, bár az átvitel meglehetősen alacsony, csak 1% körüli volt [33]. A nyalábsűrűség növekedésének definiálására a szakirodalom a fókuszálási faktort használja, amelyet a kijövő nyaláb és a bemenő nyaláb áramsűrűségének hányadosával adnak meg [34].

Később mások is elkezdtek a fókuszáló hatással foglalkozni. Meghatározták, hogy hatékony, stabil fókuszálás akkor lehetséges, ha a kúpos kapillárisban kialakuló potenciál az ionforrás kivonófeszültségének 75%-át eléri [32]. Általában 10 körüli fókuszáló faktorokkal találkozhatunk [32],[35], [36],[37], de ennél jóval nagyobbakat is publikáltak már [38],[39]. Fontos azonban tudni, hogy már $F=10$ értéknél is a bejövő nyaláb legnagyobb része elvész [34]. MeV energiájú nyalábok esetén a fókuszáló faktor meglehetősen alacsony, tipikusan $1 < F \lesssim 2$ [11].

Letöltődés

A stabil átvitel kialakulásában kulcsfontosságú szerepet játszik a kapilláris belső falára lerakott töltések relaxálódása, azaz a letöltődési folyamat. Ennek hiányában a töltéscsoport hamar túltöltődne, ami elkerülhetetlenül a bejövő nyaláb Coulomb-blokkolásához vezetne [22],[40]. A folyamat szabályozására nemrégiben aktív letöltődéssel rendelkező rendszert is fejlesztettek [41].

A belső felületen felhalmozott töltések relaxálódását első rendben két folyamat irányítja: a felület mentén és a tömbi anyag irányába lejátszódó töltéstranszport. Ezek eltérő jelentőséggel vehetnek részt a letöltődési folyamatban, mivel ugyanazon anyagnak a $\sigma_{\text{felületi}}$ felületi és $\sigma_{\text{tömbi}}$ tömbi vezetőképessége különböző. Azt, hogy melyik folyamat dominál, különböző feltevésekre lehet alapozni. Nanokapillárisokban a töltésfolt kis kiterjedése és a fólia fémréteggel bepárolgatott felszínének közelsége miatt a belső felület mentén lejátszódó letöltődést veszik elsődlegesnek, a tömbi letöltődést pedig gyakran elhanyagolhatónak találják. Fémréteggel kívülről bepárolgatott makrokapillárisokban fordított a helyzet: a töltésfolt a belső felületen akár több milliméterrel a bejáratú síktól beljebb helyezkedik el, viszont a kiterjedése viszonylag nagy, így a kapilláris falvastagságát is figyelembe véve a tömbi letöltődés lehet a domináns folyamat.

A felületi- és tömbi töltéselváándorlás mellett igen jelentős lehet még a mérőkamra szerkezeti elemeiben a bejövő nyaláb által keltett szekunderelektronok töltéssemlegesítő hatása [42]. Ennek ellenére ezzel a hatással eddig kevesen foglalkoztak.

A letöltődési folyamat pontos leírása igen bonyolult feladat. Stolterfoht és munkatársai trükkös módszert alkalmaztak a kapillárisokban lejátszódó letöltődés kísérleti mérésére. A megdöntött nanokapilláris fóliát a bejövő nyalábbal az átvitel kialakulásáig feltöltötték, majd a nyalábot megfogták. Ezt követően egységnyi időközönként rövid (néhány másodpercig tartó) próbákra engedték be a nyalábot, és közben nézték, hogy abból mekkora hányad jut át. Az idő előrehaladtával – a folyamatos töltőáram hiányában – a várakozásoknak megfelelően egyre csökkent az átvitel, de nem lineáris csökkenést tapasztaltak, hanem exponenciális összefüggést. Így jutottak arra a következtetésükre, hogy a nanokapillárisokban kialakuló igen nagy térerősségek miatt nem ohmikus vezetés történik, hanem egy nem-lineáris folyamat játszódik le [21]. Ezt később a Frenkel-Poole féle vezetési mechanizmussal magyarázták meg, és a szimulációikba is ezt az elméleti modellt építették be [43],[44].

Szintén Stolterfoht a vezető réteggel bevont külső felületű makrokapillárisok esetében a kapillárist kondenzátornak tekintette, és a belső felületen lerakott töltések tömbi anyag felé történő elváándorlását a kondenzátor

kisülésével analóg módon, lineáris (ohmikus) folyamatnak feltételezte [45], [46].

Eltérülés, dinamika

Már az első ionterelési munkákban megfigyelték, hogy a kapillárisokon átvezetett nyaláb eltérülési szögének maximuma jól egyezik a kapillárisok döntési szögével. Ez azonban csak a kifejlődött állapotra igaz, a folyamat kezdeti szakasza során az eltérülési szög változik. Ezt a szakirodalomban ezért az ionterelés dinamikus szakaszának nevezik, ami akár oszcillációkat is okozhat. Az oszcillációk a minta döntési szöge körüli oda-vissza lejátszó szög-ingadozások.

A nanokapillárisokból kijövő nyaláb átlagos emissziós szögének időbeli változását kísérletileg először Stolterfoht és munkatársai figyelték meg [20]. A publikációjukban megemlítik, hogy a szimulációk már korábban előrejelezték [14]. Ezt az oszcilláló viselkedést a kapilláris belsejében kialakuló további töltésfoltok által keltett tér megjelenésével magyarázták. Később megállapítást nyert, hogy az átvitel során a kapillárisok teljes hosszában megjelennek további töltésfoltok [47]. Ezekről azonban kiderült, hogy csak az ionterelés nem-egyensúlyi szakaszában, ideiglenesen vannak jelen, ráadásul a helyük és az erősségük is változik. Ez teszi lehetővé a kijövő nyaláb irányának oszcilláló viselkedését [48].

Makrokapillárisokkal is végeztek emissziós szög-vizsgálatot, ahol a hőmérséklet függvényében változó jelenségeket tapasztaltak. Enyhén szobahőmérséklet fölé melegített üvegkapillárisnál hosszú időn keresztül is csak enyhe nyaláb-fluktuációkat mutató, stabil emissziós szöget találtak, míg a jelentősen lehűtött mintán az időben véletlenszerűen, tág határok között változó emissziós szögeket figyeltek meg [30].

MeV energiájú nyalábok terelése

A MeV energiatartománnyal foglalkozó munkákban a nyaláb átjutását az iontereléstől eltérő folyamatoknak tulajdonítják. Az általában megfigyelt jelenség a kapilláris belső falán végbemenő szóródási folyamat [36],[49],[50]. Az ionterelést részletesen áttekintő cikkek ([9],[10],[11]) is kiemelik, hogy

ebben az energiatartományban az átvezetés az elektrosztatikus eltérítés helyett a sokszoros kis szögű szórásnak köszönhető. Ezt támasztja alá az a megfigyelés, hogy az átjutó nyaláb veszít eredeti mozgási energiájából. Protonokra már 100 keV energián azt találták, hogy az átjutást töltéscsopót által segített tükörvisszaverődés okozza (*charge-patch-assisted specular reflection*) [51]. A [33] hivatkozásban a 2 MeV He^+ nyaláb energiaveszteség nélküli átvezetését pedig a felületi csatornahatásnak (*surface channeling*) tulajdonították a szerzők, de a csatorna elhagyás (*dechanneling*) miatt a nyaláb legnagyobb része itt is elveszett.

Az energia növekedésével a terelés kialakulásának lehetőségét az korlátozza, hogy a nyaláb felületre normális sebességkomponenséből adódó $E_{\perp} = E_0 \cdot \sin^2(\Psi)$ energiát kell a felületen kialakuló potenciálnak kompenzálni, hogy a részecske ne tudjon ütközni a fallal. Ez nagy E_0 bejövő energiánál már súrlódó beesés esetén is jelentős lehet. Ez az oka annak is, hogy a csúcsos végű kapillárisokkal MeV nyalábokra csak igen kicsi fókuszáló faktorokat találtak.

Szimulációk

Az ionterelést szimulációs módszerekkel vizsgáló munkákban a bejövő nyalábot egyedi ionok sorozataként kezelik, és az egyes részecskék pályaegyenletét klasszikus megközelítéssel a newtoni (vagy hamiltoni) mozgásegyenletből számolják. A részecskék léptetésére változatos algoritmusokat használnak. A véges differencia módszerek között találkozhatunk a sebesség-Verlet algoritmussal is [34], de fejlettebb, negyedrendű prediktor-korrektor megoldással is [39] (a véges differencia módszereket a 3.2. fejezetben ismertetem). A bécsi csoport speciális algoritmust is fejlesztett: tetraéderez rácossal diszkrétizált térben a rácspontokban határozták meg a potenciál értékét, majd a tetraédeken belül analitikusan számolt pályák mentén mozgatták a részecskéket [14]. Ezzel a módszerrel a pontosság megtartása mellett a szimuláció futásidejét jelentősen lerövidítették.

A kapillárisok falára lerakott töltéseket általában diszkrét rácson veszik, és ezeket pontszerű töltéseknek, vagy Gauss-függvénnyel leírt töltéseloszlásnak feltételezve számolják ki a télerősséget a kapilláris belsejében.

A kapilláris falára lerakódott töltések viselkedésének leírására többféle modell létezik. Egy egyszerű megoldás, hogy a töltések nem mozognak, hanem az ohmikus vezetésnek ($\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}$, ahol \mathbf{j} az áramsűrűség, σ a vezetőképesség és \mathbf{E} a térerősség) megfelelően időben exponenciálisan csökkennek: $Q(t) = Q_0 \cdot e^{-t/\tau}$, ahol a $\tau = \frac{2}{\rho(\epsilon+1)}$ időállandót a ρ tömbi ellenállásból és az ϵ dielektromos állandóból lehet levezetni [34].

Schiessl és munkatársai az elektromos térerősségtől független véletlenszerű bolyongást (*random walk*) alkalmaztak a töltések belső felületen történő mozgására [14]. Ennek becslésére ismert fizikai mennyiségeket használtak fel, amelyből meghatározták a beinjektált töltés Δt idő eltelte utáni valószínűségi eloszlását.

Stolterfoht és munkatársai a Letöltődés alfejezetben említett nem-lineáris kapcsolatot feltételezve, a Frenkel-Poole elméleti modellt használva irányítják a töltéscsomók átrendeződését. Ebben a felületi vezetőképesség a térerősséggel arányosan növekszik. Az elektronok vezetési sávba történő átjutásának anyagfüggő mikroszkopikus paramétereiből következtetnek a pozitív töltések makroszkopikus idő alatt végbemenő transzport-távolságára [43].

Alkalmazási lehetőségek

Az ionterelési munkák többsége alapkutató jellegű munka, azonban gyakran potenciális alkalmazások által motivált. Az első tudományos alkalmazások lehetőségével már nem sokkal a jelenség felfedezése után megjelentek. Általában elmondható, hogy a publikált gyakorlati alkalmazások a csúcsos végű makrokapillárisok passzív fókuszáló képességét használják ki kisméretű nyaláb előállítására, a nyaláb áramsűrűségének növelése mellett. A Terelés makrokapillárisokkal alfejezetben láttuk, hogy miként használható az ionterelés a nyalábsűrűség növelésére, így most csak néhány fontosabb, konkrét alkalmazásra térek ki.

2 MeV He^+ és 4 MeV He^{2+} nyalábot kúpos kapillárison (üveg kapilláris optikán) keresztül hoztak ki vákuumból levegőre, majd kihozott nyalábos PIXE mérést végeztek tengeri üledék mintákon [38]. Itt a kúpos kapilláris nagy előnye a fókuszáló hatásán túl az volt, hogy a vákuum és az atmoszféra közé

nem kellett elválasztó fóliát tenni, aminek a beszakadása potenciális veszélyforrás a gyorsítóra nézve. Bár a PIXE spektrumok minősége elmaradt a vákuumban végzett mérésekétől (pl. az üvegapilláris anyagában keltett Si röntgensúcsok is megjelentek a spektrumban), ez már egy valódi alkalmazását jelentette az ionterelési jelenségnek. Ezt követően máshol is fejlesztettek mikro-PIXE rendszert [52] és levegőre kihazott mikro-STIM rendszert [53] is kapilláris optikát használva.

Szintén a csúcsos végű kapilláris fókuszáló hatását hasznosítani lehet sejtek besugárzására. Ha egy sejtenyészetben csak néhány kiválasztott sejtre irányítják a nyalábot a kapillárisal, akkor lehetőség van a besugárzásra adott biológiai válasz in-situ vizsgálatára, miközben a tenyészet többi sejtje kontrollként ép marad [54]. Azonban a néhány mikrométer átmérőjű kapilláris-csúcs lehetővé teszi egészen kis térfogatok célzott besugárzását, például nagyobb sejtekben az egyes sejtalkotók külön besugárzását is, amit sejtsebészetnek (*cell surgery*) neveznek [36],[55]. Ebben az esetben viszont a kapilláris végét néhány mikrométer vastagságú fóliával zárják le, hogy a folyadék ne tudjon visszaáramolni. A kapilláris csúcsát szcintillátor fóliával lezárva pedig az áthaladó ionok hatására kibocsátott fotonok detektálásával egyedi ionok számlálására képes eszközt is kifejlesztettek [56].

Kitekintés

A 2.3. fejezet kizárólag pozitív töltésű ionok terelésének mechanizmusát és tulajdonságait mutatja be, mivel PhD munkám során én is ezzel foglalkoztam. Említés szintjén érdemes azonban megjegyezni, hogy egyéb töltött részecskék terelésének vagy kapillárisokon történő átvitelének a folyamatait is vizsgálták. Ezek között a legjelentősebb egyértelműen az elektronokkal végzett munka (pl. [57],[58]) de találkozhatunk negatív töltésű ionokkal [59], pozitronokkal [60], fullerénnel [61], vagy müonokkal is [62]. Töltött részecskéken kívül pedig még fény átvezetésének a tulajdonságait is vizsgálták [63].

3. Eszközök és módszerek

Ebben a fejezetben a először a kísérleti munka során használt fontosabb berendezések és eszközök felépítését és működési elvét mutatom be. A fejezet második felében először az általam alkalmazott számítógépes módszereket ismertetem, majd azokat számítógépes programcsomagokat, amelyeket a munkám során használtam.

3.1. A kísérletekhez használt berendezések és módszerek

Van de Graaff gyorsító

Kísérleteimet az Atomki 5 MV névleges terminálfeszültségű, függőleges tankrendszerű VdG gyorsítóján végeztem, amelynek főbb paramétereit az 1. táblázat tartalmazza [64]. A gyorsító sematikus rajza a 3.1.1. ábrán látható.

Gyorsítófeszültség-tartomány	0,8 – 5 MV
Iontömeg-energia szorzat	56 MeV × amu/e ²
Energiastabilitás	< 1 keV
Maximális nyalábintenzitás, direkt	50 μA
Maximális nyalábintenzitás, analizált	10 μA
Ionforrás	Induktív csatolású RF ionforrás
Ionválaszték	H ⁺ , D ⁺ , He ⁺ , C ⁺ , N ⁺ , O ⁺ , Ne ⁺

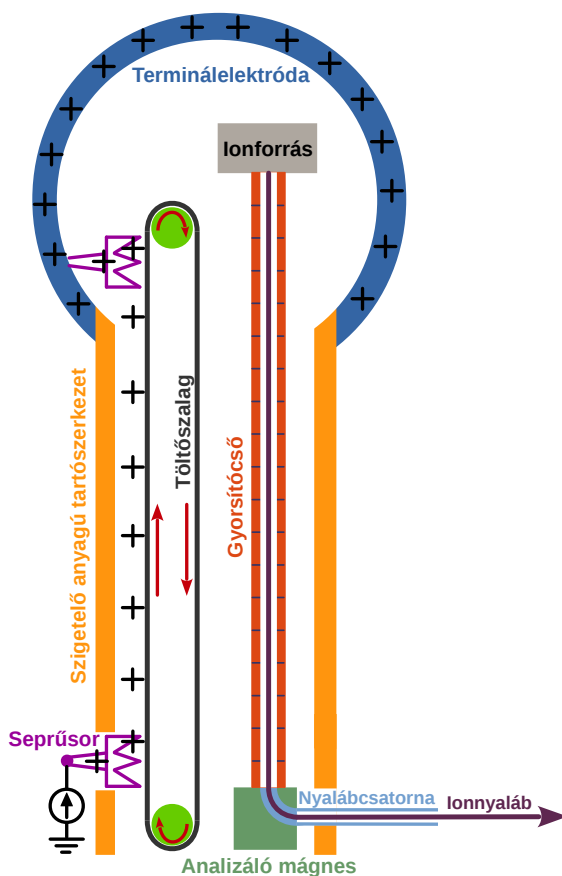
1. táblázat. Az Atomki VdG-5 gyorsítójának főbb névleges paramétereit.

A Van de Graaff (VdG) gyorsító elektrosztatikus gyorsító, tehát sztatikus elektromos teret használ a töltött részecskék (ionok) gyorsítására. Egyvégű gyorsító esetében a nyalábenergia

$$E = q \cdot U \quad , \quad (3.1.1)$$

ahol q a gyorsítandó részecske töltése, U pedig az alkalmazott gyorsítófeszültség.

Van de Graaff típusú gyorsítók terminálektródáját egy végtelenített, nagy sebességgel körbefutó szigetelő anyagú szalagon szállított töltések töltik. A töltéseket a szalagra egy nagyfeszültségre (néhány kV-ra) kapcsolt tű- vagy seprűsor viszi fel, és azokat a terminálektróda belsejében egy másik ilyen szedi le. Állandó terminálfeszültség esetén az így előállított töltőáram fogja a láncáramból, a nyalábáramból és a gyorsítócsőben visszafutó elektronáramból, a koronatrióda áramából, valamint a terminálektróda szigetelt tartószerkezetén elfolyó kúszóáramokból fellépő veszteségeket kompenzálni. A terminálektróda és a gyorsítótartály fala között nagynyomású szigetelőgáz csökkenti az átütések kialakulásának lehetőségét.



3.1.1. ábra. A Van de Graaff típusú gyorsító felépítésének sematikus ábrája.

Az ionforrás – egyvégű gyorsító lévén – a terminálektróda belsejében helyezkedik el. Az Atomki VdG gyorsítójában rádiófrekvenciás gerjesztésű (RF) ionforrás található, amelyben a néhány száz Pa (néhány mbar) nyomású munkagáz ionizálását induktilvan csatolt rádiófrekvenciás elektromágneses tér végzi. Az így előállított plazmából az ionokat egy nagyfeszültségű kivonóelektróda vonja ki és továbbítja a gyorsítócsőbe, ahol megkezdődik az ionok gyorsítása.

A gyorsítócső 64 darab ekvipotenciális elektródából és az őket elválasztó szigetelőgyűrűkből áll. Az ekvipotenciális elektródák a terminálfeszültség és földpotenciál közötti potenciálkülönbséget osztják egyenlő részekre egy feszültségosztó ellenállásláncon keresztül. Az ekvipotenciális elektródák szerepe többcélú: egyrészt ezek segítségével lehet végig közel állandó gyorsítóteret előállítani, másrészt megfelelő geometriával kissé inhomogén tér állítható elő, így a gyorsítócső falába csapódó ionok által kiváltott szekunderelektronok visszafelé történő gyorsítását is megakadályozzák, továbbá az enyhén széttartó nyalábot fókuszálják is. A gyorsítócsőtől kezdve a nyaláb energiaszórásának minimalizálásához már nagyvákuum előállítására van szükség, azaz innen már 10^{-5} Pa (10^{-7} mbar) nagyságrendű a nyomás. Az utolsó elektróda után az ionok elérik a földpotenciált, tehát innen már nem történik további gyorsítás. A nyaláb kilép a gyorsítócsőből és a nyalábcsatornában folytatja útját.

A következő lépésben a nyaláb analizálása történik meg, azaz a megfelelő töltés/tömeg arány kiválasztása. Ezt a feladatot látja el az analizáló mágnes, amely egy erős dipól mágnes. A homogén mágneses térben a mozgó töltések a mágneses Lorentz-erő miatt körpályára állnak. Egyensúlyi helyzetben a mágneses Lorentz-erő egyensúlyban van a centrifugális erővel,

$$F_{Lorentz} = F_{centrifugális} \quad , \quad (3.1.2)$$

azaz

$$q \cdot \mathbf{v} \times \mathbf{B} = \frac{m \mathbf{v}^2}{r} \quad , \quad (3.1.3)$$

ahol q a részecske töltése, \mathbf{v} a sebessége, \mathbf{B} a mágneses indukció, m a részecske tömege, r pedig a körpálya sugara. A mágneses Lorentz-erőben a sebesség és a térerősség között vektoriális szorzat van, azonban esetünkben a

sebesség iránya (közel) merőleges a mágneses térre, így a $\sin(90^\circ)=1$ összefüggés miatt az egyenlet leegyszerűsödik. A 3.1.3. egyenletet átalakítva és az $E_{\text{mozgási}} = \frac{1}{2} m v^2$ összefüggést felhasználva (a néhány MeV energiájú ionok sebessége még nem relativisztikus, ezért ez a kifejezés használható) látható, hogy az r pályasugár az energia négyzetgyökével növekszik (MeV energiákon ezért használnak inkább mágneseket), és hogy a mágneses tér egyben tömegszelektív is:

$$r = \frac{m v}{q B} = \frac{\sqrt{2mE}}{q B} . \quad (3.1.4)$$

Az analizáló mágnes is több feladatot lát el egyszerre. Egyrészt tehát a kívánt fajtájú (tömegű) és töltésű, monokromatikus nyaláb előállítását végzi. Másrészt a gyorsítóból kilépő függőleges irányú nyalábból az analizáló mágnes vízszintes síkba fordítja azt, ami az egész gyorsító laboratórium kialakítása miatt praktikus. Ezen kívül pedig az analizálás során résáram-visszacsatolással terminálfeszültség-stabilizálás is történik, ami a nyaláb energiaszórását minimalizálja.

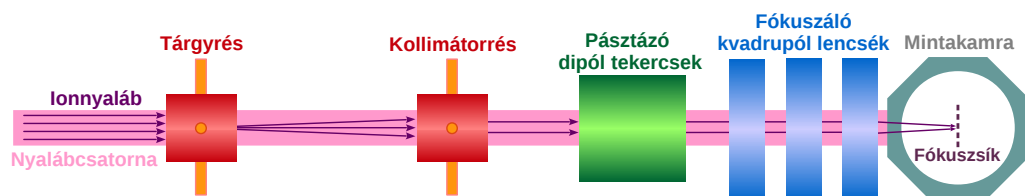
Analizálás után a nyaláb fókuszálására és kismértékű irányváltoztatására aszimmetrikus gerjesztésű mágneses kvadrupól dublett lencsék szolgálnak. Azokban a laboratóriumokban, ahol szimmetrikus gerjesztésűek a kvadrupólok, vagy ahol a kondenzorlencse szerepét az analizáló mágnes veszi át, az irányváltoztatáshoz feltétlenül szükséges legalább két pár elektromos vagy mágneses dipól használata.

Az analizált nyalábot ezt követően egy kapcsolómágnes vezeti be az éppen használni kívánt nyalábcsatornába. A kapcsolómágnes szintén dipól mágnes, itt azonban a nyaláb vízszintes síkban marad, és analizálás sem történik már. Itt érdemes megjegyezni, hogy vannak olyan laboratóriumok, ahol a kapcsolómágnes tölti be az analizáló szerepet: 2018 tavaszáig az Atomki Tandetron gyorsítója is így üzemelt [65].

Pásztázó ionmikroszkóp

Néhány MeV energiájú ionnyalábok mikroméretűre történő fókuszálására használt berendezéseket ionmikroszkópoknak nevezik. A fókuszált nyaláb a

minta felszínén általában pásztázható is, ilyenkor pásztázó ionmikroszondáról beszélünk. Az első ionmikroszondát Cookson és munkatársai építették meg 1970-ben Harwellben [66]. A munkájukat kifejezetten mikroanalitikai célok motiválták: az addig használt, fókuszálatlan, kis áramsűrűségű nyalábbal kis területek vizsgálata is túl sok időt vett igénybe. Ma is általánosságban elmondható, hogy az ionmikroszonda laboratóriumok legfőbb felhasználási területe az ionnyalábos analízis. Az Atomki 5 MV-os Van de Graaff gyorsítójának 0 fokos nyalábvégén 1994 óta működik ilyen mikroszonda berendezés. Bár sokféle ionmikroszondát kifejlesztettek és alkalmaztak sikerrel, mégis azt lehet mondani, hogy a Debrecenben is üzemelő rendszer egy tipikus, a tárgy-formáláshoz, a pásztázáshoz, vagy a leképezéshez a legelterjedtebb megoldásokat alkalmazó berendezés. Így az ilyen típusú mikroszondák bár nem kizárólagosak, mégis uralkodónak tekinthetők a világ ionmikroszonda laboratóriumaiban. Az Atomki mikroszondájának sematikus rajza látható a 3.1.2. ábrán.



3.1.2. ábra. Az Atomki Oxford-triplett típusú mikroszondájának sematikus rajza.

A mikroszondák esetében is szükséges a kondenzorlencse használata, hasonlóan a fény- és elektronmikroszkópokhoz. Ennek a szerepét töltik be a Van de Graaff gyorsító fejezetében ismertetett aszimmetrikus kvadropól dublett lencsék.

A mikroszonda nyalábvégek szűk értelemben vett ionoptikai rendszerének első eleme a tárgy-formáló részrendszer, vagy röviden tárgyírás. Az ezen áthaladó nyaláb képét fogja a szonda lekicsinyíteni a fókuszszíkra. A tárgy-távolság tipikusan néhány méter. Nagyobb tárgy-távolság nagyobb kicsinyítési tényezőt eredményez, viszont ebben az esetben a rendszer kisebb akceptanciája miatt csökken a nyalábintenzitás. A nyaláb széttartásának (divergenciájának), ezáltal a lencsehibáknak a csökkentésére még a fókuszáló lencsék előtt egy kollimátorrés-rendszert is alkalmaznak. A kisebb divergencia legnagyobb

mértékben a gömbi hibát csökkenti, de a kromatikus és a parazitikus aberrációk is arányosak a divergencia valamelyik hatványával [67].

A mikroszondák legalapvetőbb része a fókuszáló egység. A töltött részecskék fókuszálásának több lehetséges módja is van, amelyeket mindet sikerrel alkalmazták is mikronyaláb létrehozására (pl. elektrosztatikus [68], plazmalencse [69], szolenoid [70]). Mivel azonban a gyors (MeV energiájú) ionok mágneses merevsége igen nagy, a mágneses Lorentz-erő sebességfüggését kihasználva általában mágneses kvadrupól lencsét használnak a fókuszálásukra. A kvadrupól mágnesben fellépő mágneses erővonalak iránya olyan, hogy a lencse nyalábot az egyik síkban fókuszálja, míg a másikban defókuszálja, azaz vonalfókuszot alkot. A pontfókusz elérése érdekében tehát legalább két, egymáshoz képest 90 fokkal elforgatott gerjesztésű kvadrupól lencse egymás utáni alkalmazására van szükség (dublett konfiguráció). Kettőnél több lencse megfelelő konfigurációban alkalmazva azonban nagyban javíthatja a nyalábparamétereket (kicsinyítési tényezők, lencsehibák). A legelterjedtebb konfiguráció a három lencséből álló Oxford-triplett [71],[72],[73],[74],[75]. Ezen kívül gyakori még a négy lencséből álló orosz kvadruplett [76]. Természetesen egyéb lencsekonfigurációk is léteznek, amelyek gyakran egyedi fejlesztések (pl. [77],[78]), ráadásul a nyalábméret további csökkentése iránti igény (nanoszondák megjelenése) új technológiák felhasználását igénylik. Így jelentek meg a kétfázisú fókuszálást (*two-stage focusing*), és az egymástól eltávolított lencsét (pl. *spaced triplet*, *spaced quadruplet*) alkalmazó konfigurációk. Az Atomki fókuszáló rendszere eredetileg két mágneses kvadrupól lencséből álló dublett rendszerű volt [79], azonban 2004 óta egy harmadik lencsével kiegészítve már Oxford-típusú tripllett konfigurációt alkot. Ezen túl, egy esetleges továbbfejlesztés érdekében megtörténtek az első lépések [80].

A nyaláb pásztázását gyakran dipól mágnesek végzik, noha itt már gyakrabban találkozni elektrosztatikus eltérítéssel, mivel a gyors pásztázás során a mágnesek hiszterézise igen hátrányos [81]. Ebből is legalább kettőre van szükség (X és Y irányú pásztázás), de ennél több dipólból álló konfiguráció is létezik. Ilyen az úgynevezett kutyaláb (*dogleg*) pásztázó rendszer [82]. Ennek használata a nanoszondáknál lehet szükséges, hogy a kvadrupólokban szükségszerűen (elsősorban a lényegesen eltérő kicsinyítési tényezők miatt)

különböző X és Y nyalábmenetek ellenére is optimálisan biztosítható legyen Y irányban is az X irányúval megegyező méretű pásztázás. A pásztázó egység általában a fókuszáló egység előtt helyezkedik el (*pre-lens scanning*), mivel a kis munkatávolság miatt a fókuszáló lencsék és a fókuszpont között már fizikailag nem lenne rá hely. Ha mégis a fókuszáló egység után helyezik el a pásztázó egységet (*post-lens scanning*, pl. [83]), akkor a nagyobb munkatávolság miatt kisebb lesz a kicsinyítési tényező, cserébe viszont a pásztázás nem rontja a nyaláb minőségét a szférikus aberráción keresztül. Mivel a nyaláb által pásztázható terület mérete korlátozott (az Atomki mikroszondáján 2 MeV-es protonokra kb. $2,5 \times 2,5 \text{ mm}^2$), ezért elterjedt megoldás a motorizált mintamozgatóval a fix nyaláb alatt a mintát pásztázni. Ennek használata azonban limitált: a mozgatási sebesség tartománya a kisebb maximális pásztázási sebesség miatt jóval szűkebb. Ráadásul a mechanikus alkatrészek miatt a mozgatás kevésbé pontos és reprodukálható, tehát bonyolult alakzatokban történő pásztázásra nem igazán alkalmas, ami ionnyalábokkal végzett litográfia esetén gyakori követelmény. Egyszerű struktúrák, például csatorna hullámvezetők azonban sikerrel készíthetők ilyen módon (pl. [84]).

Részecskedetektálás

A különböző kölcsönhatások megértéséhez szükség van vagy a bombázórészecskék, vagy a vizsgált folyamat során keletkezett részecskék tulajdonságainak meghatározására. Ionok, illetve általánosságban az ionizáló sugárzások detektálásának alapelve, hogy a detektálni kívánt részecske a detektor érzékeny térfogatában valamilyen fizikai változást hoz létre. Töltésállapot-változás esetében ez közvetlenül feszültségimpulzussá alakítható. Ilyen elven akár félvezető, akár gáztöltésű detektort is lehet készíteni. Az is lehetséges, hogy a változást követő másodlagos folyamatot, például a gerjesztést követő rekombináció fénykibocsájtását, vagy neutronok esetében a másodlagosan keltett részecskék ionizáló hatását használják fel a mérhető jellel történő átalakításra. A keltett jelekből aztán vissza lehet következtetni a sugárzás különböző tulajdonságaira, mint annak fajtájára, intenzitására, vagy az energiaspektrumára, azaz a részecskék energia szerinti gyakoriságának eloszlására. Ezeken kívül természetesen még egyéb detektortípusok is léteznek,

mint például amelyek a részecske pályáját teszik láthatóvá (pl. ködkamra, maratott nyomdetektor). Az alábbiakban azoknak a detektoroknak a működési elvét ismertetem, amelyeket a kísérleteim során én is használtam.

Félvezető detektorok

A félvezető szilárdtest detektorokban az érzékeny térfogat egy szilícium vagy germánium kristályban létrehozott p-n átmenet kiürített rétege. A kiürítést záróirányú feszültséggel érik el, amelynek vastagsága a rákapcsolt feszültség nagyságával szabályozható. Kis feszültség kis kiürített réteg-vastagságot eredményez, amely nagy ionenergia esetén kedvezőtlen. Nagy feszültség esetében pedig a növekszik a detektoron keresztül folyó áram, így romlik a jel/zaj viszony. Az érzékeny térfogatba lépő ionok lefékezés közben elektron-lyuk párokat keltenek, amelyek száma arányos az ion energiájával. A keltett töltések a záróirányú előfeszítés hatására a megfelelő elektródák felé igyekeznek, amely így egy feszültségimpulzust hoz létre. Ezeknek az impulzusoknak az amplitúdója tehát a detektált részecskék energiájától, frekvenciája pedig az intenzitásuktól függ. Így a jelek megfelelő erősítés és jelformálás után alkalmasak a detektálandó ionok energiaspektrumának és intenzitásának a meghatározására.

A felületi záróréteges (*Surface Barrier, SB*) detektorok esetében a szilícium kristályra vékony aranyréteget párologtatnak. A p-n átmenet az aranyréteg és a félvezető közt alakul ki (Schottky-átmenet), így a kiürített réteg azonnal, a vékony fémréteg alatt kezdődik. Az SB detektorok ezért igen jó energiafeloldással rendelkeznek, így RBS mérésekhez gyakran alkalmazzák. Hátrányuk, hogy meglehetősen drágák.

Jóval olcsóbbak a PIN fotodiódák, amelyekben egy p-típusú és egy n-típusú réteg között egy szennyezetlen, közbenső (*intrinsic*) réteg helyezkedik el. Bár ezeket fény detektálására fejlesztették ki, az azonos detektálási elv (azaz töltéshordozók keltése) miatt ionok detektálására is alkalmazhatók. Az energiafeloldásuk ráadásul összehasonlítható a jóval drágább részecskedetektorokéval [85], így elsősorban STIM mérések esetén előszeretettel alkalmazzák is [75],[82],[86],[87].

Szcintilláció

Bizonyos anyagokban az őket érő sugárzás hatására nagy intenzitású fényfelvillanás keletkezik. Ezt kiválthatja foton, elektron vagy ion is. A jelenség oka a bombázó részecskék által indukált gerjesztés. A legerjesztődés során keletkező foton a látható fény hullámhossztartományába esik. Ha a gerjesztés szingulett állapotba történik és nincs spinváltás, akkor a legerjesztődés azonnal lejátszódik (tipikusan $10^{-6} - 10^{-9}$ másodperc alatt), ezt fluoreszcenciának hívják. Ha azonban a gerjesztés triplett állapotba történik, spinváltás megy végbe, ezért a legerjesztődés nem azonnal játszódik le. Ezt foszforeszcenciának nevezik, amelynél akár órák is eltelhetnek a gerjesztés és a legerjesztődés között.

A szcintillációs elven működő detektorok ezeket a felvillanásokat detektálják. Gyakori, hogy a keletkező foton egy fotokatódba ütközik, ahonnan elektront vált ki, amit aztán egy fotoelektron sokszorozó erősít fel mérhető nagyságú elektromos jellé. Léteznek egyéb detektálási módszerek is, például azok a fotodiódák, amelyekben az abszorbeált fotonok a p-n átmenet kiürített rétegében keltnek elektron-lyuk párokat, amelyek aztán közvetlenül feszültségimpulzusként jelennek meg a detektor kimenetén.

Mi a kísérleteink során ilyen szcintillátor anyagot használtunk, de nem egy dedikált, kompakt részecskedetektor formájában, hanem egyszerűen egy átlátszó hordozóra felvitt vékonyréteg ernyőként. A detektálásra egy CCD érzékelővel rendelkező digitális fényképezőgépet alkalmaztunk. Mivel az általunk használt anyag a szcintilláció prompt formáját mutatja, ezért a továbbiakban az eszközre fluoreszcens ernyő névvel fogok hivatkozni.

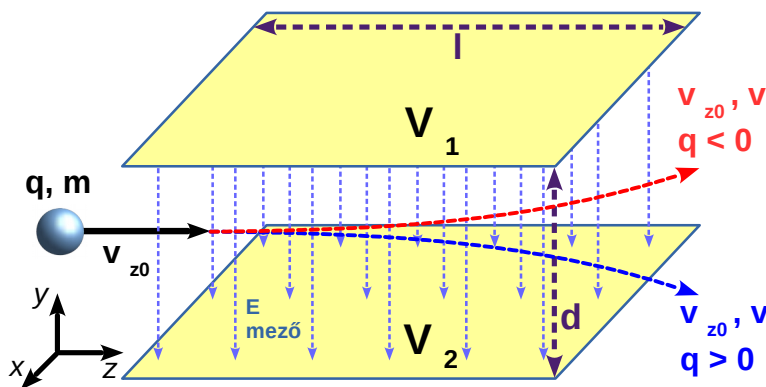
Elektrosztatikus eltérítés

Az

$$F_{Lorentz} = q \cdot E \quad (3.1.5.)$$

elektromos Lorentz-erőt kihasználhatjuk töltött részecske-nyalábok eltérítésére. Az egyenletben q a lövedék töltése, E pedig az elektromos térerősség. Az eltérítéshez a nyaláb sebességére merőleges irányú elektromos térre van szükség, azaz gyakorlatilag egy síkkondenzátor lemezei között kell a nyalábot keresztülvezetni, ami így egy transzverzális irányú sebességkomponenst ad a töltött részecskéknek. A jelenséget a gyorsító technikában a nyalábvezetés

során is kihasználják (*steererek*), de ezen az elven működnek az eltérítő típusú spektrométerek is.



3.1.3. ábra. Az elektrosztatikus eltérítés elvi rajza. Magyarázata a szövegben található.

A folyamatot a 3.1.3. ábrán szemléltetem, amelyen egy töltött részecske halad át l úthosszon két, egymástól d távolságra elhelyezett elektróda között. A felső elektródán V_1 potenciál van, az alsón pedig $V_2 < V_1$ (ez lehet akár földpotenciál is). Ideális esetet feltételezve az alsó és a felső lemez között

$$E = \frac{V_1 - V_2}{d} \cdot \mathbf{u}_y$$

homogén elektromos tér alakul ki. Legyen a beérkező, q

töltésű és m tömegű részecske kezdeti helye és sebessége $\mathbf{r}_0 = (0, 0, 0)$ és $\mathbf{v}_0 = (0, 0, v_{z0})$. A lemezek közé beérve, az elektromos Lorentz-erő miatt a

részecske $\mathbf{a}_y = \frac{qE}{m}$ és $\mathbf{a}_z = 0$ gyorsulással fog haladni $t = \frac{l}{v_z}$ ideig. A

lemezek közül való kilépéskor így

$$v_y = a_y t = \frac{q l E}{m v_z} \quad \text{és} \quad (3.1.6.)$$

$$v_z = v_{z0} \quad (3.1.7.)$$

lesz a sebessége. A v_x és a_x értéke végig 0. A kilépéskori pozícióban $z = l$, ezért ezt behelyettesítve a kilépéskori y koordinátára az

$$y = \frac{1}{2} \frac{qE}{m v_{z0}^2} z^2 \quad (3.1.8.)$$

összefüggést kapjuk, azaz a részecske a lemezek közt haladva parabolapályát ír le. Az is látható, hogy a nevező a mozgási energiával arányos, tehát az elektromos tér a tömegre nem szelektív, csak energiát szeparál.

A 3.1.8. összefüggésből kiderül, hogy ha egy monoenergiás nyalámban többféle töltésállapotú részecske van, akkor a rájuk ható különböző nagyságú erők miatt egységnyi távolságon különböző nagyságú eltérést szenvednek, így a módszer töltésállapot szerinti szétválogatásra is alkalmas.

3.2. Számítógépes módszerek és programcsomagok

Az ionterelés vizsgálata során kapott kísérleti eredményeket számítógépes szimuláción keresztül vettem össze az elméleti megfontolásokkal. Ennek érdekében egy hibrid, molekuláris dinamikai és Monte-Carlo módszereket is alkalmazó szimulációt fejlesztettem, amelyhez a C programozási nyelvet használtam. A szimuláció célja egy olyan elméleti modell megalkotása volt, amely képes jól leírni a vizsgált rendszer viselkedését. Amint az eredményeim tartalmazó fejezetből később kiderül, ezen szimulációk képesek voltak további ismereteket is nyújtani, azonban itt most csak a szimuláció néhány kiemelten fontos elemével, a véletlenszámok előállításával, a részecskék mozgásának leírásával, és az anyagba beimplantált töltések dinamikájának kérdésével kívánok foglalkozni, melyek a következő fejezetekben újra és újra feltűnnek [88],[89]. Továbbá ismertetek két számítógépes programcsomagot, a SRIM-et [90] és a WinTRAX-ot [91],[92], amelyek a szimulációm bemenő paramétereit szolgáltatták.

Szimulációs módszerek

A számítógépes szimulációkat a véletlenszerűség szerepe alapján 3 nagy csoportra lehet osztani. A Monte-Carlo szimulációk sztochasztikus módszerek, bennük a véletlenszerűség szerepe a meghatározó. Ezzel szemben a determinisztikus módszerekben a rendszer időfejlődése előre meghatározott, a véletlenszerűség szerepe minimális, a rendszer kezdeti állapotából és

mozgástörvényeiből a későbbi állapot egyértelműen meghatározható. Ide tartoznak a molekuláris dinamikai szimulációk, amelyek a newtoni (vagy hamiltoni) mozgásegyenletek alapján számítják a rendszert alkotó részecskék mozgását. Ha a rendszert közösen irányítják determinisztikus és sztochasztikus folyamatok, akkor pedig hibrid módszert kapunk.

Sztochasztikus összetevő: véletlenszámok előállítás

A véletlenszerűség megvalósítása a megfelelő eloszlású véletlenszám-sorozat előállításán alapul. A számítógépes gyakorlatban valódi véletlenszámok helyett általában pszeudo-véletlenszámok előállítása történik meg. Ez a legtöbb esetben megfelelő, azonban a véletlenszám-generátornak ki kell elégítenie néhány alapvető követelményt:

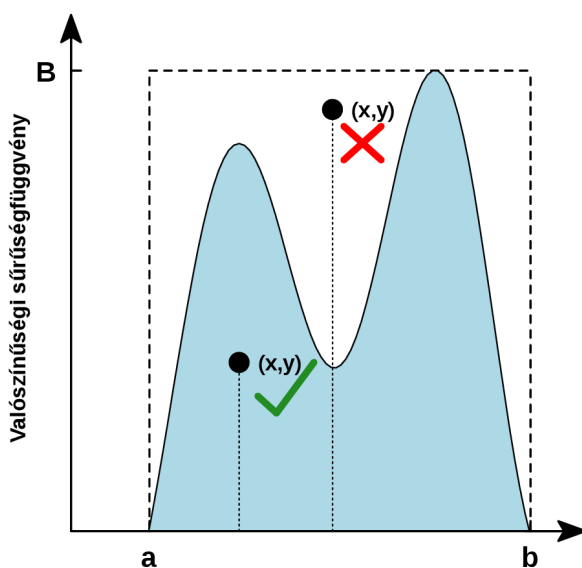
- 1) az egymást követő számok közt nem lehet erős korreláció,
- 2) minél nagyobb legyen a periódushossza,
- 3) legyen gyors, azaz kevés processzoridőt igényeljen,
- 4) legyen reprodukálható a számsorozat.

Egy általánosan elterjedt eljárás, ami a fenti követelményeket kielégíti, a lineáris kongruens moduló generátor, amelynek általános formulája $X_{n+1} = (aX_n + c) \bmod m$, ahol X_n a generált pszeudo-véletlenszám sorozat, a , c és m pedig a generátor viselkedését meghatározó paraméterek. Megfelelő paraméterezéssel a fenti követelményeket kielégítő egyenletes eloszlású véletlenszám-sorozat állítható elő. A C standard könyvtárában megtalálható *rand()* függvény is ezt az eljárást használja.

Szimulációk során gyakran szükség van az egyenletestől különböző eloszlásokat követő véletlenszám-sorozatokra, amelyhez az egyenletes eloszlást kell átranzformálni a kívánt eloszlásra. Gauss-eloszlásra gyakran alkalmazott módszer a Box-Muller algoritmus [93], amely két független, (0,1) intervallumon vett véletlenszámból állít elő két független, standard normális eloszlású véletlenszámot. Ebből már a kívánt várható értékkel és szórással rendelkező Gauss-eloszlás könnyen előállítható. Tetszőleges eloszlás is előállítható, bizonyos feltételek teljesülése esetén: a generálandó eloszlás $p(x)$ valószínűségi sűrűségfüggvényét normálni kell, majd a $P(x)$

eloszlásfüggvényt meghatározni. Végül pedig ezt invertálva az egyenletes eloszlású számsorozatból már a kívánt eloszlású véletlenszám-sorozatot kapjuk.

Az is lehetséges, hogy a kívánt véletlenszám-sorozat eloszlásfüggvénye nem adható meg zárt alakban, vagy a valószínűségi sűrűségfüggvényt nem lehet analitikusan normálni. Ebben az esetben magából a sűrűségfüggvényből is generálhatunk véletlenszámokat a Neumann-féle Dob-Elvet (*Hit and Miss*) módszerrel, de csak egy véges $[a, b]$ intervallumon. A módszer működését szemlélteti a 3.2.1. ábra.



3.2.1. ábra. A Neumann-féle Dob-Elvet módszer tetszőleges eloszlású véletlenszámok generálására. Ha a függvényt befoglaló $(b-a) \cdot B$ oldalú téglalapba egyenletes eloszlással generált $(x \in [a, b], y \in [0, B])$ pont a függvénygörbe alatt van, akkor x -et elfogadjuk, ha fölötté, akkor mindkettőt eldobjuk.

Először is ki kell jelölni egy olyan B valós számot, amelyre teljesül, hogy $B \geq p(x)$ minden $x \in [a, b]$ esetén, azaz a függvénygörbét egy téglalapba kell foglalni. Ezt követően generálni kell egy $x \in [a, b]$, és egy $y \in [0, B]$ intervallumon vett, egyenletes eloszlású véletlenszámot. Ha az adott x pontban $y > p(x)$, akkor mindkét véletlenszámot eldobjuk (*miss*), ha viszont $y \leq p(x)$, akkor x talált (*hit*) és elfogadjuk a véletlenszám-sorozat következő elemeként.

Determinisztikus összetevő: differenciálegyenletek numerikus megoldása

A differenciálegyenletek numerikus módon történő megoldásához fejlett eszköztár áll a felhasználók rendelkezésére. A véges differencia módszerek (*Finite Difference Method, FDM*) alapja, hogy a megoldandó differenciálegyenletben szereplő deriváltakat annak diszkrét pontjaiban differencia hányadosokkal, véges differenciákkal közelítik. A közelítést Taylor-sorfejtéssel, majd a Taylor-sor csonkolásával érik el.

A pályák numerikus számítását végző szimulációban szereplő mozgásegyenlet esetén a megoldandó egyenlet Taylor-sora felírható mint

$$x(t + \Delta t) = x(t) + \frac{dx}{dt} \Delta t + \frac{1}{2!} \frac{d^2x}{dt^2} \Delta t^2 + \frac{1}{3!} \frac{d^3x}{dt^3} \Delta t^3 + \dots, \quad (3.2.1.)$$

amit tetszőleges tag után csonkolhatunk. A közelítés hibája az elhagyott tagok összege, ami a legelső elhagyott, el nem tűnő tag nagyságrendjébe esik, ezért ez határozza meg a módszer rendjét. Ha a csonkolás az első deriváltat tartalmazó tag után következik, az Euler-módszert kapjuk, amely tehát első rendű. Látható, hogy a dt csökkentésével a hiba csökken, de numerikus számítások során jelen van még a számítógép véges számábrázolásából fellépő kerekítési hiba. Ez a csonkolási hibával együtt adja az úgynevezett globális hibát, amelynek viszont minimumhelye van. Magasabb rendű módszert használva azonban minden esetben javíthatunk a pontosságon, de persze ez nagyobb számításigényű algoritmust eredményez. Gyakran használják a Runge-Kutta algoritmusokat, amelyek tetszőleges rendben előállíthatóak, de a negyedrendű változata már a legtöbb alkalmazáshoz megfelelő pontosságot ad, így régóta egy széleskörűen elterjedt módszer. Én a szimulációimban a harmadrendű sebesség-Verlet módszert alkalmaztam, így ennek felépítését részletezem.

A Verlet módszer a pályae egyenlet megoldásához két időpillanatbeli értéket használ fel, amelyeknek Taylor-sorát a harmadik deriváltat tartalmazó tag után csonkolja. Az

$$x(t + \Delta t) = x(t) + \frac{dx}{dt} \Delta t + \frac{1}{2!} \frac{d^2x}{dt^2} \Delta t^2 + \frac{1}{3!} \frac{d^3x}{dt^3} \Delta t^3 \quad (3.2.2.)$$

és

$$x(t-\Delta t) = x(t) - \frac{dx}{dt} \Delta t + \frac{1}{2!} \frac{d^2x}{dt^2} \Delta t^2 - \frac{1}{3!} \frac{d^3x}{dt^3} \Delta t^3 \quad (3.2.3.)$$

egyenleteket összeadva és megfelelően átrendezve az alábbi összefüggést kapjuk:

$$x(t+\Delta t) = 2x(t) - x(t-\Delta t) + \frac{d^2x(t)}{dt^2} \Delta t^2 \quad (3.2.4.)$$

Mivel a harmadrendű tag kiesik, ezért az első elhagyott, el nem tűnő tag Δt^4 - nel arányos, tehát a módszer harmadrendű. Nagy előnye, hogy lépésenként csak egyszer kell a részecskék közti kölcsönhatásokat kiszámolni, ami molekuláris dinamikai szimulációk esetében a program egyik leginkább számításigényes része, ezért esetükben gyakran alkalmazzák ezt a módszert. Ha a sebesség értékekre is szükség van a pálya mentén, akkor a sebesség-Verlet módszert kell használnunk, amelynek iterációs egyenletei pedig az alábbiak:

$$x(t+\Delta t) = x(t) + v(t) \Delta t + \frac{1}{2} a(t) \Delta t^2 \quad (3.2.5.)$$

és

$$v(t+\Delta t) = v(t) + \frac{1}{2} [a(t) + a(t+\Delta t)] \Delta t \quad (3.2.6.)$$

Parciális differenciálegyenletben szereplő deriváltak közelítése analóg módon történik. A megoldani kívánt $u(x)$ egyenletet Taylor-sorba kell fejteni, majd az

$$u_{i+1} = u_i + \left(\frac{\partial u}{\partial x} \right)_i \Delta x + \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right)_i \frac{(\Delta x)^2}{2} + \left(\frac{\partial^3 u}{\partial x^3} \right)_i \frac{(\Delta x)^3}{6} + \dots \quad (3.2.7.)$$

és

$$u_{i-1} = u_i - \left(\frac{\partial u}{\partial x} \right)_i \Delta x + \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right)_i \frac{(\Delta x)^2}{2} - \left(\frac{\partial^3 u}{\partial x^3} \right)_i \frac{(\Delta x)^3}{6} + \dots \quad (3.2.8.)$$

egyenleteket megfelelően átrendezve kapjuk az elsőrendű deriváltak közelítéséhez használt három alapvevő diszkretizációs sémát (lásd 3.2.2. ábra):

- 1) haladó differencia (*forward difference*), amelyhez a 3.2.7. egyenletet kell az első deriváltat tartalmazó tag után csonkolni, így ez a fentebb bemutatott Euler-módszerrel analóg, elsőrendű módszer:

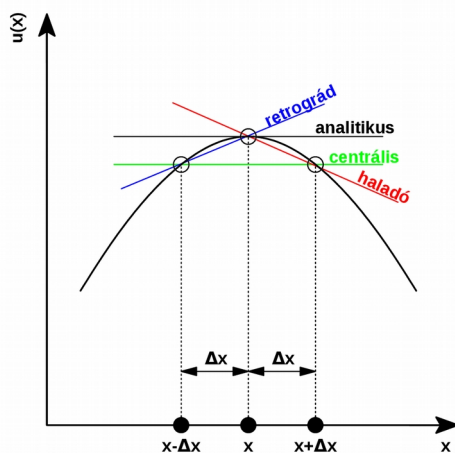
$$\left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)_i \approx \frac{u_{i+1} - u_i}{\Delta x} ; \tag{3.2.9.}$$

2) retrográd differencia (*backward difference*), amelyhez a 3.2.8. egyenletet kell szintén az elsőrendű tag után csonkolni, ezért ezt retrográd Euler (*backward Euler*) módszernek nevezik, ami szintén elsőrendű:

$$\left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)_i \approx \frac{u_i - u_{i-1}}{\Delta x} ; \tag{3.2.10.}$$

3) és centrális differencia (*central difference*), amelyhez a 3.2.7. és 3.2.8. egyenleteket kell a másodrendű tag után csonkolni, majd egymásból kivonni (a másodrendű tag kiesik, ezért a módszer másodrendű):

$$\left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)_i \approx \frac{u_{i+1} - u_{i-1}}{2 \Delta x} . \tag{3.2.11.}$$



3.2.2. ábra. Haladó, retrográd és centrális differenciasémák geometriai szemléltetése.

A másodrendű deriváltak közelítéséhez össze kell adni és át kell rendezni a második deriváltat kifejező tag után csonkolt 3.2.7. és 3.2.8. egyenleteket, hogy centrális megközelítést kapjunk:

$$\left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}\right)_i = \frac{u_{i+1} - 2u_i + u_{i-1}}{(\Delta x)^2} . \tag{3.2.12.}$$

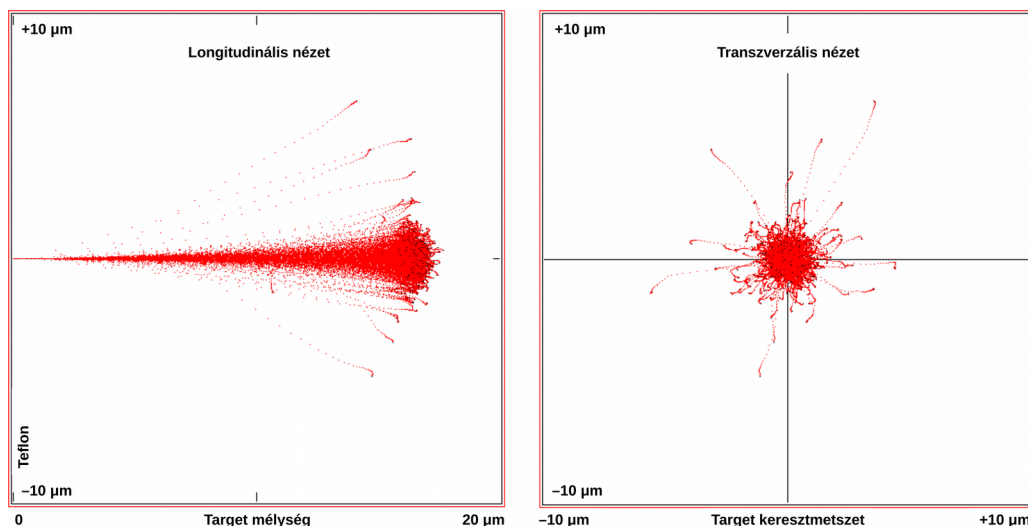
A differenciálegyenletek megoldásához szükség lehet a kezdeti értékek megadására (kezdetiérték-problémák). Ezek a részecske mozgásegyenletében

r_0 és v_0 . Ennek ismeretében a fent ábrázolt módszerrel már egyértelműen megadható a rendszer időfejlődése. Parciális differenciálegyenletek esetén pedig peremfeltételek megadása is szükséges (peremérték-probléma). Ez lehet Dirichlet-féle peremfeltétel, amelyben a szélső rácspontoknak az értéke ismert; és Neumann-féle peremfeltétel, amikor pedig a deriváltjukat (azaz a rácspontban érvényes fluxust) ismerjük. Egy speciális eset az úgynevezett periodikus peremfeltétel, amelynél a szélső rácspont mellé képzeletben a rendszer másik szélén lévő tesszük, így gyakorlatilag minden rácspont „belső” rácspontként viselkedik.

SRIM

A SRIM (*Stopping and Range of Ions in Matter*) ingyenesen letölthető programcsomag, amely az anyagban haladó ionok által keltett különböző kölcsönhatásokat modellezi [90]. A programcsomag egyik része a fékezőképességet, az ionok hatótávolságát és laterális és longitudinális szóródását számolja ki az ionenergia függvényében, amihez a kölcsönható ion fajtáját (rendszámát és tömegét) és energiáját, illetve a céltárgy sztöchiometrikus összetételét és sűrűségét kéri bemenő paraméterként. Beépített anyagkönyvtárral rendelkezik, amely számos anyag pontos összetételét és releváns paramétereit (sűrűség, vegyületi korrekciók) tartalmazza. A csomag másik része jóval több funkcióval rendelkezik. Megadható a céltárgy rétegszerkezete is bemenő paraméterként, tetszőleges rétegvastagságokkal, így vékony target esetén lehetséges azon az ionok áthaladása is. Opcionálisan a rétegen áthaladó ionok megmaradó energiája és a kilépés helyzete és iránya részecskénként egy szöveges fájlba kiíratható.

Ezen kívül még számos egyéb dologra használható a SRIM. Egyedi ütközések paramétereit is képes kiírni, de visszaszórás, sőt, porlasztás modellezésére is alkalmas. A 3.2.3. ábrán bemutatom az 1 MeV energiájú, ideális (pontoszerű, monoenergiás) nyaláb teflonba történő behatolásának SRIM szimulációját.



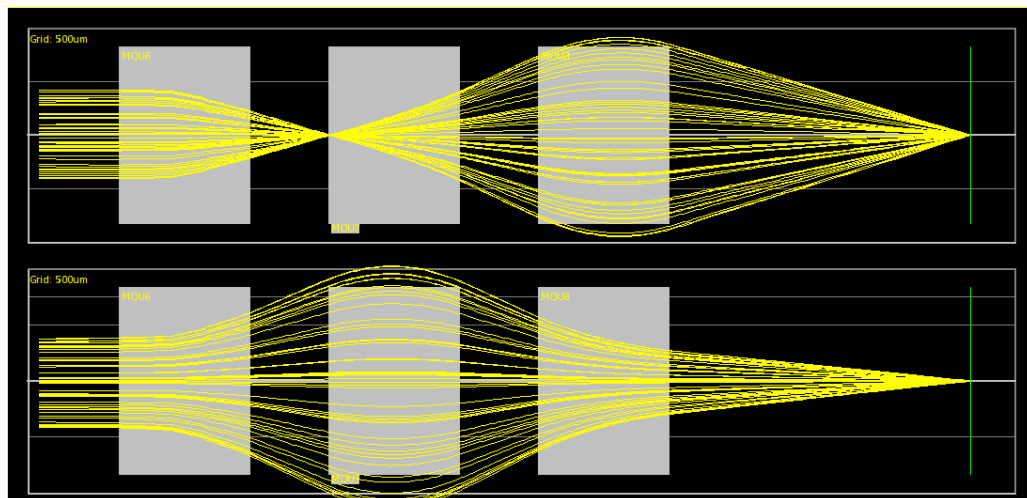
3.2.3. ábra. 1 MeV energiájú protonnyaláb behatolása teflonba. Balra: longitudinális nézet; jobbra: transzverzális nézet. SRIM szimuláció.

A munkám során a SRIM programmal kapott eredményeket az általam készített szimuláció 3 dimenziós modelljében használtam fel: a tömbe anyagba behatoló és abban haladó ionok energiavesztésének és irányváltoztatásának modellezéséhez szolgáltak bemenő adatként.

WinTRAX

A WinTRAX kifejezetten pásztázó ion mikro- és nanoszondákra optimalizált ionoptikai modellező program, amely szintén ingyenesen letölthető [91],[92]. A program egy tetszőleges ionoptikai rendszer (ionforrás, rések, dipól és kvadrupól lencsék, driftterek, fókuszszík) definiálása után képes a lencsék gerjesztését különböző felhasználói feltételekre, például a legkisebb nyalábméretre automatikusan optimalizálni, majd tetszőleges számú iontrajektória X-Y pozícióját a képsíkban vagy attól tetszőleges Z távolságban a számítógép monitorára kirajzolni, illetve a vágólapra másolni. A program a fókuszszíkban külön az X és az Y irányra meghatározza a nyalábméretet és a nyalábdivergenciát is. Emellett számos paraméter megadható, például a nyaláb eloszlásával kapcsolatban, vagy a lencsék, rések translációs és rotációs

illetetlenségei. A 3.2.4. ábrán bemutatom az Atomki mikroszondájának WinTRAX szimulációját.



3.2.4. ábra. 1 MeV energiájú, pontszerűre fókuszált protonnyaláb WinTRAX által generált nyalábmenetei az Oxford-triplett típusú lencserendszerben. A felső ábra a vízszintes sík, az alsó pedig a függőleges. A szürke téglalapok a kvadrupól mágneses lencsék. Látható, hogy az a kvadrupól lencse, amelyik az egyik síkban fókuszál, a másikban defókuszál.

A WinTRAX szimulációból kinyert adatokat a saját munkám során szintén mint bemenő adatokat használtam az ionterelési szimulációkban: a kapillárisba belépő ionok laterális- és szögeloszlását generáltam le a segítségével.

4. A tudományos eredmények bemutatása

4.1. Kísérleti paraméterek

A munka során az ionterelést a megaelektronvolt (MeV) energiatarományban kívántuk vizsgálni. A nagy nyalábenergia feltételezi, hogy jelentős elektromos potenciál szükséges a nyaláb eltérítéséhez. Ezt csak jó szigetelő tulajdonságokkal rendelkező anyag képes megtartani, ezért olyan anyagot kellett választani, amely amellett, hogy lehetőleg nem túl specifikus (azaz nem túl drága és nem túl körülményes a beszerzése), a lehető legjobb szigetelőképeséssel rendelkezik. Így esett a választásunk a poli(tetrafluoretilén)-re (PTFE), amit a Chemours cég Teflon[®] márkanévéről köznevesülve gyakran csak teflonnak neveznek. A PTFE fontosabb anyagi tulajdonságait mutatja be a 2. táblázat.

Elemi összetétel	(C ₂ F ₄) _n
Sűrűség	2200 kg·m ⁻³
Olvadáspont	327 °C
Fajlagos ellenállás	10 ¹⁶ Ω·m
Lyuk mobilitás [94]	8,9 · 10 ⁻¹⁵ m ² V ⁻¹ s ⁻¹
Dielektromos állandó	2,1

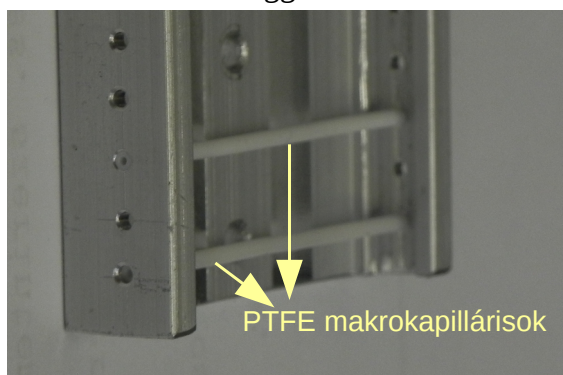
2. táblázat. A poli(tetrafluoretilén) fontosabb és jelen munka szempontjából releváns fizikai tulajdonságai [95].

A kapilláris minta hosszának praktikus okokból $l \approx 45$ mm -t választottunk, mivel a kitűzött cél makroszkopikus folyamatok vizsgálata volt. Ennél lényegesen hosszabb minta már nem fért volna el a mikroszkop mérőkamrájában. A kereskedelmi forgalomban tefloncsöveket különböző méretekben lehet megtalálni. Mi $d \approx 800 \mu\text{m}$ belső átmérőjűt választottunk, mivel így a hosszúságot figyelembe véve a kapilláris hossz/átmérő aránya

$$\frac{l}{d} \approx 56 \text{ -nak adódott, ami már kellően nagy a kísérletek elvégzéséhez, nem}$$

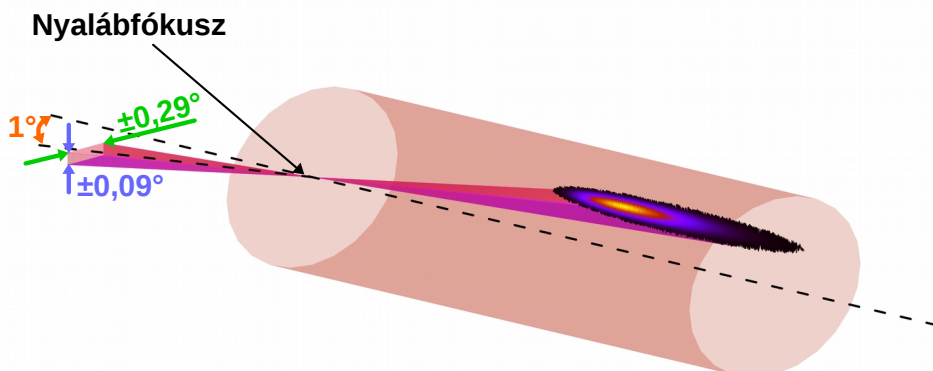
kellett túl nagy beesési szöget használni. A minta falvastagsága $s \approx 400 \mu\text{m}$, amely szintén kritikus paramétere a vizsgálatoknak, ugyanis a belső felületen

felhalmozott töltésfolt számára a tömbi anyag irányába történő relaxálódás során fellépő elektromos ellenállás ezzel egyenesen arányos. A 4.1.1. ábrán látható a kísérletekhez használt teflon makrokapillárisok fényképe. A kapillárisok a földpotenciált jelentő mintatartóba úgy vannak rögzítve, hogy azzal csak a külső felületükön, a minta első és utolsó 1 mm-es szakaszán érintkezzenek, de a mintának sem a külső felülete, sem pedig a be- és kijárat felőli homlokfelülete sincs vezető réteggel bevonva.



4.1.1. ábra. A kísérletekhez használt egyedi, hengeres PTFE makrokapillárisok a mintatartóban.

Beesési szögnek (ami a nyaláb tengelye és a kapilláris tengelye által bezárt szög) 1° -ot választottunk, hogy így egy $\pm 0,05^\circ$ -os beállítási pontatlanságot feltételezve is biztosan teljesüljön a geometriai átlátszatlanosság feltétele. Ugyan a kapilláris nyílásszöge is közel 1° , esetünkben a pontszerűnek tekinthető nyalábméretnek és a nyaláb középpontosan történő beinjektálásának köszönhetően a primer nyalábfolt nagyjából a kapilláris közepénél fog felhalmozódni (lásd 4.1.2. ábra), azaz a lehető legtávolabb a földpotenciálon lévő mintatartótól. A nyaláb divergenciája ismert: a vízszintes síkban $0,29^\circ$, a függőleges síkban pedig $0,09^\circ$ [96].



4.1.2. ábra. A kapillaris belső falán kialakuló elsődleges töltésfolt elhelyezkedése a nyaláb 1 fokos beesési szöge és 0,09 – 0,29 fokos divergenciája esetén (a láthatóság kedvéért a hossz/átmérő arány el van torzítva). A Z tengely a nyaláb optikai tengelyét jelöli ki, a Z – X sík a minta forgatási síkja.

Nyalábnak H^+ -t, nyalábenergiának pedig 1 MeV-et választottunk. Itt már teljesül a MeV/amu feltétel, tehát a nyaláb gyorsnak tekinthető. A nyaláb energiaszórását magfizikai hatáskeresztmetszet-meghatározás céljából végzett energiakalibrációs mérésekből ismerjük [97]. A protonnyaláb $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$ reakció 992 keV-es rezonanciáján mért félértékszélessége $\approx 1,5$ keV. A nyalábot az Oxfordi triplett kvadрупól lencserendszer fókuszálta le a mikrométeres tartományba. A mikroszondával fókuszált nyalábok laterális eloszlását Gauss-eloszlásúnak szokták venni, ahol definíció szerint a nyalábméret a Gauss-görbe félértékszélessége. A nyalábméretet minden mérés előtt egy hitelesített réz mikrorácson pásztázott nyaláb RBS jeleinek intenzitástérképéből határoztuk meg. Ez minden esetben $d \approx 1-4 \mu\text{m}$ -nek adódott. A nyaláb fókuszpontja minden mérés során pontosan a kapillaris bejárati síkjának a középpontjára volt beállítva.

A kísérletek során a használt bejövő nyalábinszintázások néhány pA-tól 170 pA-ig terjedtek. Az intenzitásokat úgy választottuk meg, hogy a mikroszondán tipikusan használt $50 \times 200 \mu\text{m}^2$ -es tárgyresállást változtattuk az oldalarány, és ezáltal a geometriai nyalábfolt alakjának megtartásával. Egy adott napon végzett nyalábinszintázás-mérést mutat be a 3. táblázat, de megjegyzendő, hogy adott tárgyresállás esetén is a nyalábinszintázás függ a gyorsító egyéb

paramétereinek beállításától, azaz az aktuális mérési napon végzett nyalábvezetéstől.

Tárgyrés nyílás ($\mu\text{m} \times \mu\text{m}$)	Tárgyrés felület (μm^2)	Nyalábáram (pA)	Áramsűrűség (pA/ μm^2)
15 × 60	900	8,20 ± 0,33	0,0091
20 × 80	1600	11,64 ± 0,36	0,0073
25 × 100	2500	17,88 ± 0,49	0,0072
35 × 140	4900	32,81 ± 0,81	0,0067
50 × 200	10000	65,90 ± 1,20	0,0066
100 × 400	40000	170,56 ± 1,35	0,0043

3. táblázat. A mikroszkonda különböző tárgyrés nyílásainál mért nyalábbintenzitások.

Látható, hogy a nyalábáram nem lineáris függvénye a tárgyrések által meghatározott felületnek, azaz a gyorsítóból érkező nyaláb intenzitása nem teljesen homogén eloszlású a tárgyrés keresztmetszetén belül. Ez a fókuszálás miatt nem okoz semmilyen problémát, mivel a nyaláb mérete a fókuszpontban jóval kisebb, mint a tárgyrés. Amennyiben a mikroszondán nagyobb kiterjedésű (defókuszált), homogén nyalábfoltot akarunk használni, ezt a hibát a mérés előtt korrigálni lehet a gyorsító mágnesek megfelelő hangolásával.

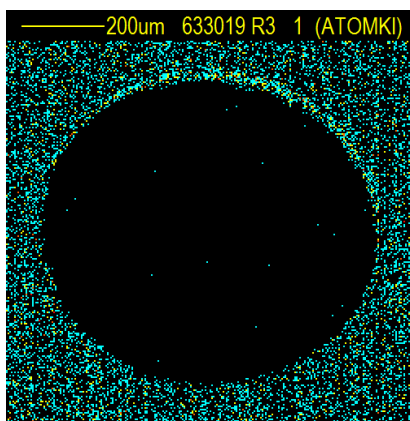
4.2. A kísérleti elrendezés összeállítása

A kísérleti munka első lépése a megfelelő mérési elrendezés összeállítása volt, melyhez az Atomki mikroszondáján rutinszerűen használt eszközöket is felhasználtunk, de szükség volt speciálisan ezekhez a kísérletekhez tervezett és készített eszközre is. A munka során a különböző folyamatok méréséhez két különböző kísérleti elrendezést is használtunk. Az egyikkel a kapillárison keresztülvezetett nyaláb intenzitását és az átvezetett részecskék energiaeloszlását tudtuk mérni. A másik elrendezéssel az átvezetett nyaláb eltérülését és töltésállapotát lehetett meghatározni. A bejövő nyalábbintenzitás mérése mindkét esetben ugyanazzal a módszerrel történt. Mind a nyaláb

intenzitásának, mind az energiaspektrumoknak a rögzítése az OMDAQ 2007 [92] programmal történt.

Mintapozicionálás

A kísérletek reprodukálhatóságának érdekében kritikus pont volt a minta lehető legpontosabban történő pozicionálása. Ehhez egy egyedülálló módszert dolgoztunk ki, amelyet a nyaláb fókuszált és pásztázható mivolta tett lehetővé. A mintabeállítást a mérőkamra geometriai középpontját (azaz a nyaláb fókuszpontját) figyelő optikai mikroszkóppal kezdtük, amelyet a nyalábvezetés során a nyaláb fókuszpontjára fókuszálunk. A mintát egy öttengelyű goniométeres manipulátorral a mikroszkóp látómezejének közepébe toltuk, amely már elég pontos volt ahhoz, hogy a nyalábot a kapilláris bejáratán egy kb. $1 \times 1 \text{ mm}^2$ -es felületen pásztázva eltaláljuk azt. A pásztázás közben visszaszórt részecske spektrumot gyűjtöttünk, tehát gyakorlatilag egy RBS mérést végeztünk. Minőségi információt ugyan nem volt szükséges kinyerni, csak mennyiségit, azaz, hogy hol van pontosan az anyag, és hol van a lyuk. Itt érdemes megjegyezni, hogy az RBS módszer helyett egyéb analitikai technikát is alkalmazhattunk volna (pl. PIXE), de praktikus okokból az RBS mellett döntöttünk. A kapilláris képét az adatgyűjtő szoftver egy RBS térképen rajzolta ki, majd a mintát a mintamozgatóval addig mozgattuk, amíg a kapilláris a pásztázott terület közepére nem került (4.2.1. ábra). A beállítás pontosságát a nyalábméret (és ezáltal az RBS térkép) feloldása, és a mintamozgató legkisebb lépése ($2,54 \text{ }\mu\text{m}$) limitálja. Ezek nagyságrendileg megegyeznek, viszont jóval kisebbek, mint a kapilláris minta méretei. A beállítás bizonytalanságát így $\approx \pm 3 \text{ }\mu\text{m}$ -nek becsültük meg. A kapilláris közepre állítása után, a nyaláb pásztázásának kikapcsolásával a nyaláb ismét az optikai tengelyben halad, azaz a kapilláris bejáratí síkjának középpontjára esik.



4.2.1. ábra. A kapilláris bejáratának RBS térképe. A kapilláris a pásztázott terület közepén helyezkedik el, tehát a kapilláris középvonala a nyaláb optikai tengelyével egybeesik.

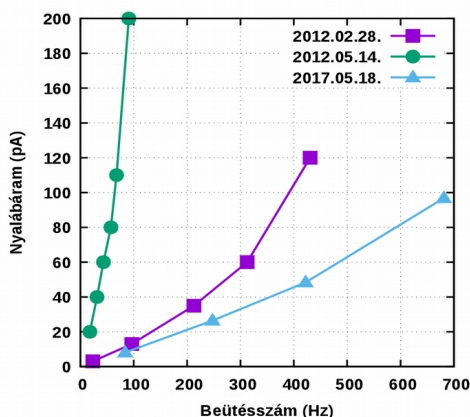
A laterális pozíció beállítása mellett a másik kritikus pont a minta dőlésszögének a pontos beállítása. Ehhez a már korábban bemutatott fluoreszcens ernyőt használtunk. Ha nagyjából (szemre) párhuzamosra van állítva a kapilláris a nyalábbal (ezt a mérőkamra betekintő ablakán lehet látni), akkor egy része akadálytalanul keresztüljut azon, elérve az ernyőt. Innen először az egyik irányba forgatva a mintát fokozatosan eltűnik a nyalábfolt. Amikor a forgatás szöge eléri a nyaláb félnyílásszögét, a folt teljesen eltűnik. Innen a másik irányba forgatva a mintát ismét megjelenik a folt, majd továbbmenve ismét eltűnik. A két szélső helyzet között – amit a vezérlő szoftverből $0,01^\circ$ pontossággal ki lehet olvasni – félúton van a párhuzamos pozíció. Ezt a folyamatot az X és az Y tengely mentén is elvégeztük (a hossz tengelye körül a kapilláris forgásszimmetrikus, így ott nem is lenne értelme a forgatásnak). Itt is érdemes megjegyezni, hogy a fluoreszcens ernyővel analóg módon a mintára eső vagy az azon átjutó nyalábáram mérésével, vagy akár STIM technikával is megkereshető a nulla fokal pozíció, az ernyős megoldás azonban egyszerűbbnek, gyorsabbnak és megbízhatóbbnak bizonyult. A 0 fokos pozíció beállítása után már szoftveresen vezérelve egyszerűen 1° -ba lehet forgatni a mintát. A forgatás tengelye kissé eltért a kapilláris bejáratának helyétől, így már az 1 fokos megdöntés hatására is kissé elcsúszhatott a minta laterális pozíciójának beállítása. Ezért a fent leírt teljes

folyamatot 2-3 iterációs lépésben megismételve már nagy pontossággal a kívánt helyzetbe lehetett állítani a mintát.

Bejövő nyalábintenzitás mérése

A mérőkamrába beérkező nyaláb intenzitásának mérését egy úgynevezett nyalábszaggatóval, azaz csopperrel végeztük [98]. A csopper a nyaláb mérőkamrába történő belépési pontjánál helyezkedik el, és egy forgó lapátkerékből és egy vele szemben elhelyezett részecske-detektorból áll. A lapát egy külső tápegységgel hajtva folyamatos forgásban van, így folyamatosan megszaggatva a kamrába beérkező nyalábot. A lapátkerékről – amikor az éppen a nyaláb útjában van – a részecskék a nyaláb intenzitásával arányos mértékben szóródnak a vele szemben elhelyezett részecske-detektorra, azaz itt is egy RBS spektrum felvétele történik. A detektor beütésszámát figyelve tehát, megfelelő kalibráció után, lehetőség van a kamrába érkező nyaláb intenzitását indirekt módon mérni, még mielőtt a nyalábot „felhasználjuk”. A csopperlapát néhány Hz körüli frekvenciával forog, és geometriája miatt az időnek kb. 10 százalékában takarja ki a nyalábot, tehát másodpercenként néhányszor 5 – 10 ms-ig. Ez bizonyos esetekben problémát jelenthet (például ionnyalábbal végzett litográfia során szaggatott vonalat húz a nyaláb), esetünkben azonban ennek nem volt jelentősége, a szigetelő kapilláris belső falán felhalmozódó töltések relaxálódása ennél sok nagyságrenddel lassabb folyamat. A bejövő nyalábintenzitáshoz igazodóan különböző csopperlapátok használhatók, amelyek a megfelelő visszaszórt részecskehozam elérése érdekében különböző rétegvastagságban nagy tömegszámú anyaggal, arannyal vannak bepárolgatva. Kisebb nyalábintenzitás esetén például a vastagabb aranyrétegről nagyobb hozammal visszaszóródó részecskék biztosítják a detektoron a megfelelő statisztikájú beütésszámot. A csopper kalibrációját emiatt minden mérés előtt célszerű volt elvégezni, ráadásul a kamrába beszerelés során sohasem lehet pontosan ugyanúgy elhelyezni, vagy a lapát forgásának sebességét sem lehet mindig pontosan ugyanakkorára beállítani, így a kalibráció is mindig más és más. Mindemellett, a jelfeldolgozó elektronika holtidejének a részecske-detektor beütésszámával való növekedése miatt a nyalábáram és a beütésszám hányadosa nem is konstans érték, hanem a

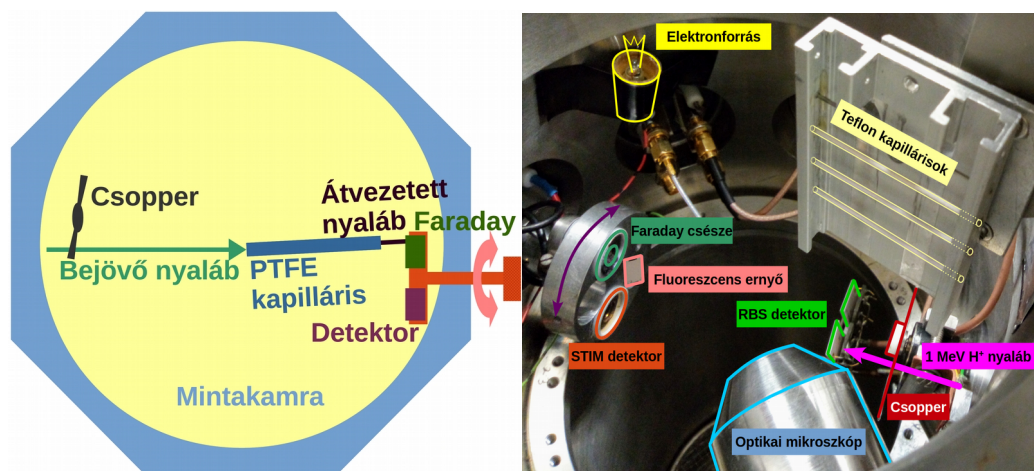
nyalábárammal nő. A 4.2.2. ábrán bemutatok néhány különböző mérés előtt felvett kalibrációt.



4.2.2. ábra. A nyalábcsoopper kalibrációja különböző mérések előtt. Az eltérések oka a különböző csopperlapátok eltérő vastagságú aranybevonata.

A mérések kiértékelése során az adott időpillanatban a ténylegesen beérkező nyalábintenzitást mindig az adott napon végzett kalibráció megfelelő beütésszámai közötti lineáris interpolálással határoztam meg.

Az átvezetett nyalábintenzitás és nyalábenergia mérése



4.2.3. ábra. A kapillárison átvezetett nyaláb intenzitásának és energiaspektrumának mérésére használt kísérleti elrendezés sematikus rajza (bal) és fényképe (jobb). A fényképen a mintatartó a láthatóság érdekében felemelt állapotban van.

A kapillárison keresztülvezetett nyaláb intenzitásának és energiaspektrumának mérésére szolgáló elrendezés a 4.2.3. ábrán látható.

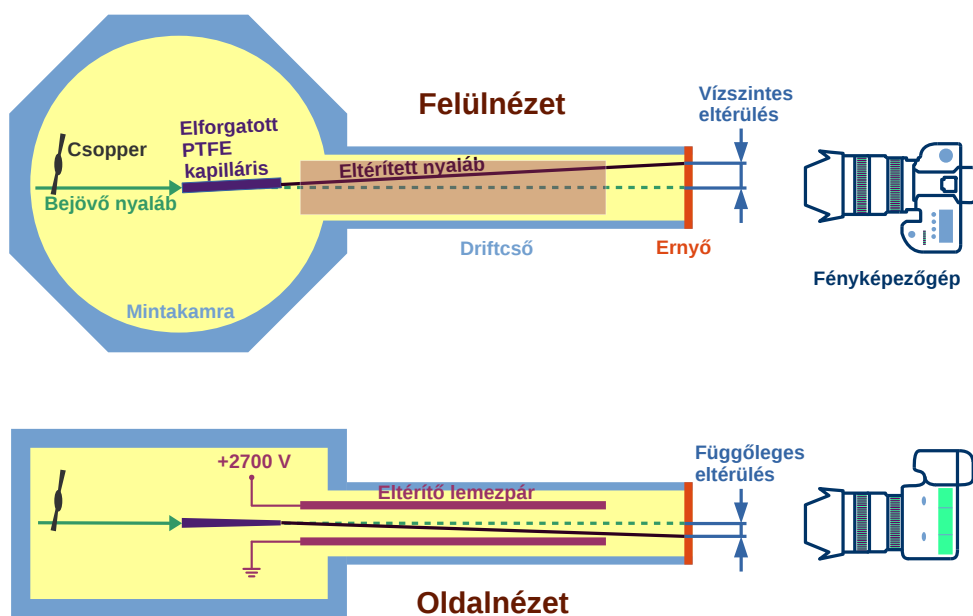
Az átvezetett nyaláb intenzitását egy áramintegrátoron keresztül leföldelt Faraday-csésze segítségével mértük. A Faraday-csésze gyakorlatilag egy grafittuskóba fúrt kellően mély lyuk, amely lyukba beérkező nyaláb ráesik az integrátoron keresztül leföldelt elektródára. A lyukat körülvevő grafittuskó a nyaláb beesésekor kiváltott szekunderelektronokat fogja meg nagy hatékonysággal, megakadályozva a hamis áramértékek mérését. A méréshez egy Oxford Microbeams Ltd. OM-35e [92] típusú integrátort használtunk, amelynek érzékenysége a gyártói specifikáció alapján 100 fC/beütés.

A részecskék energiaspektrumát egy felületi záróréteges részecske-detektor (Ortec) vagy egy PIN típusú fotodióda (Hamamatsu) segítségével mértük. Az SB detektor névleges energiafeloldását a gyártó ≈ 5 MeV-es alfa-részecskékre 15 keV-nek adja meg, a PIN dióda esetében pedig – mivel ezt fény detektálására szánja a gyártó – nincs megadva a feloldás. Az 1 MeV protonokra vonatkoztatott feloldást mindkét esetben egy kalibrációs méréssel határoztam meg, ami mindkét esetben 15 – 20 keV közötti értékek adódott. A detektor a részecskespektrumok felvétele során a minta mögött, azaz on-axis STIM (ld. 2.2. fejezet) pozícióban van elhelyezve. Klasszikus STIM mérésről mégsem beszélhetünk, ugyanis nem egy vékony mintán keresztülhaladó nyaláb energiaveszteségét mérjük, mivel vagy előreszóródás történik, vagy pedig ütközések (és energiaátadás) nélküli folyamat.

Az elrendezésből adódóan a nyaláb vagy a Faraday-csészébe esik, vagy a részecske-detektorra, egyszerre nem mérhető az intenzitás és az energieloszlás. Mivel azonban a Faraday és a detektor egy közös, a vákuumkamrán kívülről forgatható tárcsán ülnek, a kísérlet közben is lehet őket váltogatni. Fontos azonban megemlíteni, hogy míg a nyalábáram tipikusan a néhány – néhány száz pikoamperes nagyságrendbe esik, a részecske-detektor csak 4-5 nagyságrenddel kisebb, legfeljebb néhány tized femtoamper intenzitást (tehát néhány 100 – néhány 1000 Hz beütésszámot) tud tartósan, károsodás nélkül mérni (illetve a jelfeldolgozó elektronika is ennyit tud feldolgozni). Emiatt az energieloszlás-mérésre történő váltás nem csak egyszerűen a Faraday-nek egy mozdulattal a detektorra történő cseréjét jelenti, hanem a bejövő nyalábintenzitás részfák zárásával történő jelentős lecsökkentését is megköveteli. Természetesen, az

árammérésre való visszaállásnál – a Faraday kapilláris mögé történő visszaforgatása után – a rések eredeti állapotukba való visszanyitásával az eredeti nyalábintenzitást minden esetben visszaállítjuk. Az energiaspektrumok mérésének rövid, néhány percig tartó időtartama elhanyagolhatóan tekinthető a kialakult töltéscsopót relaxálódásában, amelyet az is alátámaszt, hogy az árammérésre történő visszaállás után az átvitel ugyanonnan folytatódik, ahol az intenzitás lecsökkentésekor megszakadt.

A nyaláb emissziós szögének és töltésállapotának meghatározása



4.2.4. ábra. Az eltérülés és töltésállapot meghatározáshoz használt elrendezés vázlatos rajza.

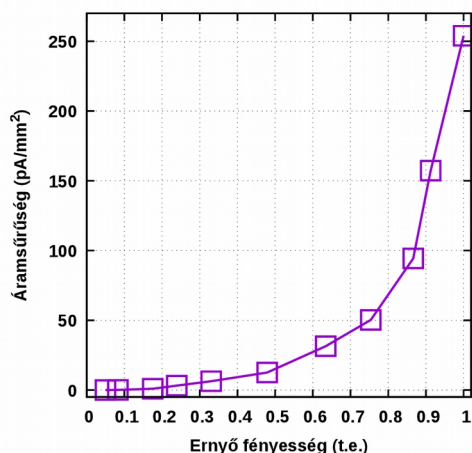
A második elrendezéssel, amelynek sematikus rajza a 4.2.4. ábrán látható, a kapillárisból kilépő nyaláb eltérülésének szögét és a töltésállapotot határoztuk meg. Ehhez a mérőkamra hátuljára egy driftcsövet szereltünk, amely egyrészt helyet biztosított egy elektrosztatikus eltérítő lemezpár számára, másrészt driftteret jelentett a mintából kijövő nyalábnak. Az eltérítő lemezpár két rézelektrodából áll. Az egyik elektróda földpotenciálban van, míg a másikra

nagyfeszültség kapcsolható, így a lemezek közt kialakuló elektrosztatikus erőter a benne mozgó töltésekre Lorentz-erőt fejt ki, azokat eltéríti. Praktikus okokból 2,7 kV nagyfeszültséget választottunk, amely a 3.1.6. és 3.1.8. egyenleteket felhasználva, az adott geometrián (figyelembe véve, hogy az eltérítő lemezpár és az ernyő között még marad $l_{\text{lemezpár-ernyő}} \approx 5 \text{ cm}$ drifttér) $dy_{2,7 \text{ kV}} \approx 2 \text{ mm}$ eltérést okoz az 1 MeV-es protonoknak.

A driftcső végét egy átlátszó kvarcüveg zárta le, amelyre a vákuum felőli oldalára rögzítettük a fluoreszcens anyaggal bevont ernyőt. Az ernyő a részecskesugárzás hatására indukált fluoreszcencia miatt intenzíven világít a látható tartományban, és mivel speciális nanoszemcsés anyagból készült, a nyaláb méretéhez képest elhanyagolható a laterális feloldása. Így lehetővé vált, hogy a nyaláb pozíciójáról a vákuumon kívülről egy digitális fényképezőgéppel fényképeket készíthessünk.

Amint az a 4.2.4. ábra alsó részén is látható, az eltérítő lemezpár úgy van elhelyezve a driftcsőben, hogy a keltett elektromos erővonalak függőlegesek legyenek, tehát a rajta átrepülő protonoknak függőleges irányú (esetünkben lefele mutató) gyorsulást okozzanak. Ezzel szemben a kapilláris forgatási síkja a vízszintes sík volt, tehát a nyaláb mintában történő irányváltatása is a vízszintes síkban várható. Ez tette lehetővé, hogy egymástól függetlenül megfigyelhető legyen a kapilláris elforgatása és az eltérítő lemezpár miatt kialakuló eltérés.

Az első eltérülési kísérletek során még nem, de később a fluoreszcens ernyőt is alkalmaztuk nyalábintenzitás-meghatározásra. Az ernyő fényessége ugyanis a ráeső nyaláb áramsűrűségével növekszik. Ehhez egy megfelelő kalibrációt kellett elvégezni: ismert nyaláb-áramsűrűségek mellett készített fényképeken kellett a nyalábfolt fényességét meghatározni. Ezt az összefüggést invertálva aztán, az eltérülési kísérletek során a fényesség adatokból az ismeretlen áramsűrűség megbecsülhető volt. Ez a kalibráció látható a 4.2.5. ábrán.



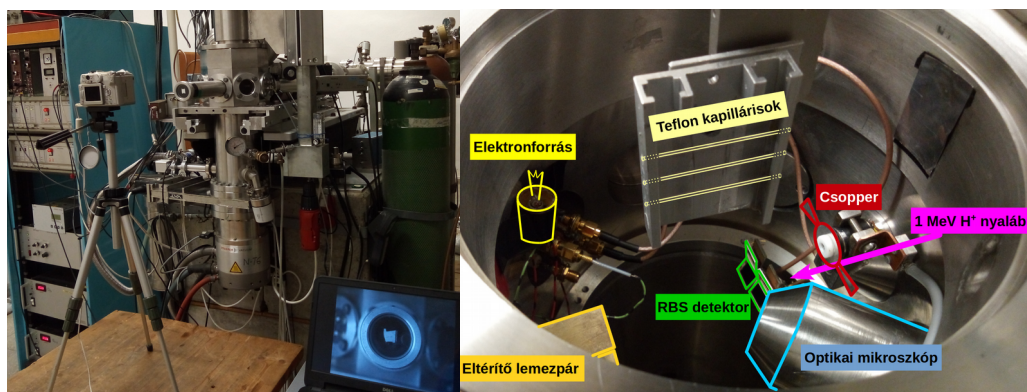
4.2.5. ábra. Az ernyőre eső áramsűrűség a fényesség függvényében.

Ezzel a módszerrel lehetőség nyílt indirekt módon a 4.2.4. ábrán látható elrendezéssel is mérni az átvezetett nyaláb intenzitását. Ehhez a következő lépésekre volt tehát szükség:

- 1) az ernyőre eső nyalábfoltról készült fényképekből ki kellett válogatni azokat a pixeleket, amelyek a háttérnél nagyobb fényességet mutatnak;
- 2) ezt a kalibrációs pontok alapján, interpolálással áramsűrűséggé kellett átkonvertálni;
- 3) az egyes pixelekre eső áramsűrűség adatokból, és a méret-kalibrálásból meghatározott pixelméretből az egyes pixelekre eső abszolút nyalábáram meghatározható;
- 4) és végül az összes pixel áramértékét fel kellett szummázni, amelyből így az ernyőre eső teljes nyalábáramot megkapjuk.
- 5) Ha nem az összes pixelt, csak azoknak a sorait vagy oszlopait összegezzük fel, akkor pedig annak a profiljából az átlagos vízszintes vagy függőleges divergencia is meghatározható.

A digitális fényképek feldolgozásához a GNU Octave programot használtam [99].

A kísérleti elrendezés fényképe kívülről és a mérőkamra belsejében látható a 4.2.6. ábrán.



4.2.6. ábra. Az eltérés és töltésállapot meghatározáshoz használt mérési elrendezés fényképe kívülről (balra) és a kamra belsejében (jobbra).

Töltések semlegesítése

Az egyes mérések során a kapillárison felhalmozódott töltés a következő mérést megghamisítaná, ezért szükség volt a kapillárison felgyülemlett töltések semlegesítésére. Erre az egyik kézenfekvő módszer lehet a mintaváltás, de ez csak abban az esetben célravezető, ha egyszerűen kivitelezhető. Esetünkben a pontos mintapozícionálás nehézsége miatt alternatív megoldást kerestünk. A mérések között a kapilláris falán felgyülemlett töltést egy termikus elektronforrással semlegesítettük. Termikus elektronforrásnak egy egyszerű wolfrámszálal izzót használtunk, amelynek az üvegbúráját eltávolítottuk. Az izzó természetesen csak a mérések között, a töltések semlegesítése közben volt bekapcsolt állapotban. A módszer tesztelése során azt tapasztaltuk, hogy a feltöltődött, nagy hatásfokkal átvezető kapilláris mellett az izzót rövid ideig bekapcsolva az átvezetés hatásfoka visszacsökken a kezdeti értékre, tehát a semlegesítés hatékonyan működik. A tömbi anyagban esetlegesen bennmaradó „eltemetett” töltések semlegesítése nem garantált, ami így a mérések bizonytalanságához adott járulékot.

A kísérleti elrendezés összeállítása és az első tudományos eredmények az [E1] publikációkban kerültek közlésre.

4.3. A számítógépes szimuláció kidolgozása

A kísérleti eredményeket számítógépes szimuláció segítségével kívántam modellezni, amellyel az eredmények sikeres reprodukálása esetén azokat értelmezni lehet, és amely jóslatokat is képes lehet adni a kísérletileg ki nem mutatott folyamatokra. Ezért a szimuláció paramétereit (a kapilláris méreteit és anyagát, nyalábenergiát, beesési szöget) a kísérleti körülményekkel megegyezően választottam meg. A bejövő nyaláb energiáját 1 MeV várható értékű, 1,5 keV félértékszélességű Gauss-eloszlással generált véletlenszámsorozattal adtam meg.

A szimuláció fejlesztésének első lépésében egy egyszerűbb modellt használtam. Ebben a valóságot annak egy 2 dimenziós, X–Z metszetével modelleztem (ez a kapilláris forgatási síkja), így kapilláris jobb és bal oldali fala is egydimenziós (vonal menti) volt. Másrészt a lejátszódó folyamatokban is jelentős egyszerűsítéseket tettem, úgy mint a bejövő nyaláb eloszlásában, a részecskék tömbi anyagba történő behatolásában és haladásában, valamint a nyaláb által lerakott töltések újrendeződésében. Bár ez a modell egyszerű, mondhatni primitív megközelítése a valóságnak, meggyőzően jól leírta a kísérletek során tapasztaltakat, így valóban tudtam jóslatokat is tenni a kísérletek során ki nem mutatott jelenségekre. Ilyenek voltak az időfejlődés alacsony és nagy nyalábbintenzitás használat során, illetve a nyaláb emissziós szögének dinamikus viselkedése. Ezt az utóbbit később kísérlettel igazoltam is.

A szimulációt ezt követően továbbfejlesztettem, így már egy valóságosabb modellt hoztam létre. Egyrészt a teret kiterjesztettem 3 dimenzióra, másrészt mind a bejövő nyaláb eloszlására, mind a részecskék tömbi anyagban való haladására, mind pedig a kapilláris falában végbemenő töltésátrendeződésre a valóságot sokkal jobban közelítő leírásokat használtam. Így aztán ezzel a modellel is tudtam olyan következtetéseket tenni, amelyekre sem a kísérletekkel, sem pedig a korábbi, 2 dimenziós szimulációval nem volt lehetőség.

A 2 dimenziós modell

A bejövő nyaláb laterális és szögeloszlása

A protonok a kapilláris bejáratának síkjából indulnak, ahol a nyaláb fókuszpontja van. A szimulációkban a nyalábméretet a bejövő intenzitásától függetlennek tekintettem, az egyes részecskék r_{x0} koordinátáját egy 1 μm félértékszélességű Gauss-eloszlással generált véletlenszám adta meg.

A nyaláb tengelye a kapilláris tengelyével 1° -os szöget zár be. A divergencia, azaz a nyaláb félnyílásszöge az $Z - X$ síkban $0,29^\circ$. A nyaláb divergencián belüli szögeloszlását az egyszerűség kedvéért egyenes eloszlású véletlenszám-sorozat generálásával adtam meg.

A lövedékionok mozgásának leírása

A protonok haladását a Newton-féle mozgásegyenlettel írtam le, amely az elektromos Lorentz-erővel (3.1.5. egyenlet) az alábbi kifejezést adja:

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = q \mathbf{E} \quad , \quad (4.3.1.)$$

ahol m a proton tömege, q a töltése, $\mathbf{r}=(r_x, r_z)$ a helyvektora,

$\mathbf{E}=(E_x, E_z)$ pedig az adott pontban jelenlévő elektromos térerősség. A tér, (abból pedig a protonra ható Coulomb-erő) meghatározása a kapilláris jobb és baloldali falának diszkrétizált belső felületén pontszerűnek tekintett töltések taszító erejének szuperpozíciójával történt, azaz

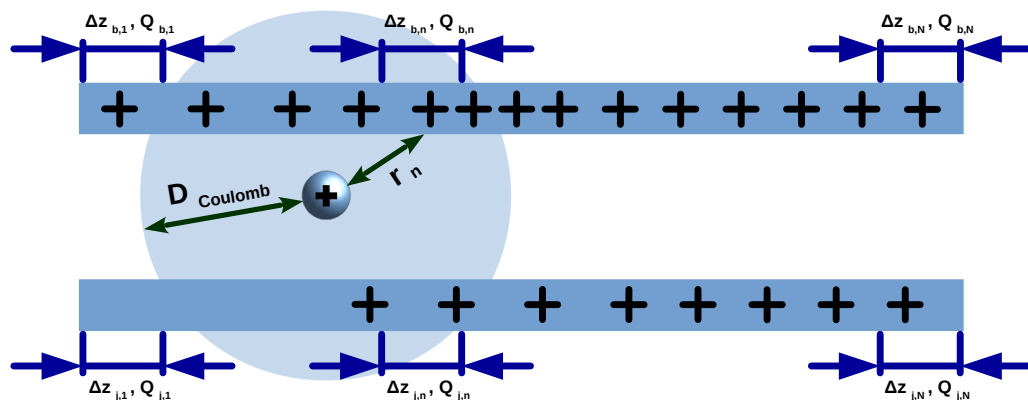
$$\mathbf{E}(t) = \sum_{\forall r_n < D_{Coulomb}} \sum_{j,b} k_e \frac{\frac{2}{\epsilon+1} \cdot Q_n(t)}{r_n^2(t)} \quad , \quad (4.3.2.)$$

ahol k_e a Coulomb-állandó, $\epsilon=2,1$ a PTFE dielektromos állandója, Q_n pedig az n -edik rácspontban található töltésmennyiség. A számlálóban található

$$\frac{2}{\epsilon+1} \cdot Q_n = Q_{\text{árnyékolt}}$$

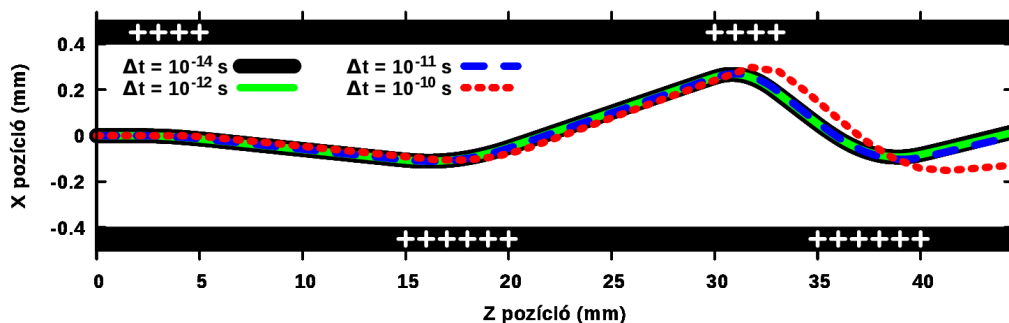
összefüggés a dielektrikum felszínén lévő töltések terét csökkentő dielektromos árnyékolást fejezi ki. A $D_{Coulomb}$ érték a Coulomb-köcsönhatás maximális távolsága, amelyet a szimuláció futásidejének csökkentésére vezettem be, és amelynek meghatározását az Optimalizálás

alfejezetben ismertetem. A modell sematikus működését a 4.3.1. ábrán mutatom be.



4.3.1. ábra. A 2 dimenziós modell sematikus rajza.

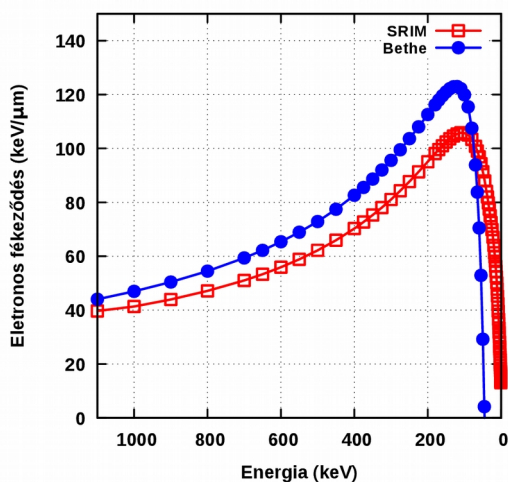
A mozgásegyenlet megoldására a 3.2. fejezetben bemutatott sebesség-Verlet módszert alkalmaztam (a részecskék léptetése a 3.2.5. és 3.2.6. egyenletekkel történt), az optimális dt lépésközt pedig tesztekkel határoztam meg. Ehhez a kapilláris falára „mesterségesen” töltéseket vittem föl, majd egy tág tartományt átfogó dt lépésköz-sorozattal egyedi részecskéket indítottam, és megnéztem, hogy mi az a legnagyobb időlépés, amikor még a részecskepálya egybeesik egy nagyon kicsi dt lépésközzel indított proton pályájával. Ezt a tesztet a 4.3.2. ábrán mutatom be. A legkisebb lépésközt $dt=1\cdot 10^{-14}$ s -nak választottam. Ennyi idő alatt az 1 MeV energiájú proton kb. 140 nanométert tesz meg, ami a kapilláris makroszkopikus méreteihez képest már igen kicsinek mondható. Látható, hogy $dt=1\cdot 10^{-11}$ s esetén már enyhén eltér a számított részecsketrajektória, fölötté pedig értelemszerűen egyre nagyobb a különbség. Ezért a szimulációk során a lépésközt a pikoszekundum tartományban tartottam, tipikusan $dt=1\cdot 10^{-12}$ – $5\cdot 10^{-12}$ s -nak választottam.



4.3.2. ábra. A Δt lépésköz finomságának hatása egy részecske trajektóriájára.

A részecskék energialeadása és irányváltoztatása az anyagban

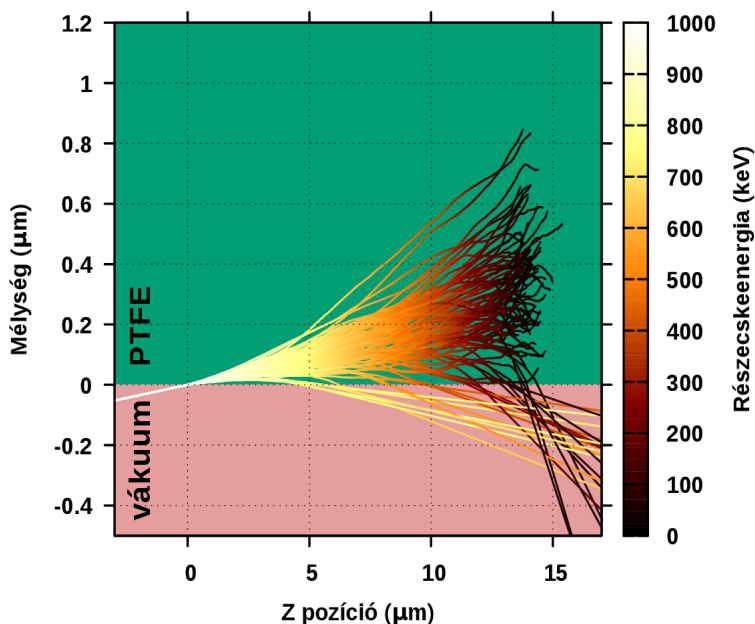
A kapilláris falába ütköző protonok az anyaggal kölcsönhatásba lépve elkezdik leadni energiájukat, azaz lefékeződnek, miközben az irányuk is megváltozik. Az energialeadás folyamatát gyors, nehéz töltött részecskékre a Bethe-Bloch formula írja le (2.1.1. egyenlet). A szimulációban először ennek megfelelően vettem figyelembe a protonok energiavesztését, tehát egységnyi úthossz megtétele után az analitikus formulának megfelelő várható értékű, Gauss-eloszlással generált véletlenszámmal csökkent a mozgási energia. A formulával kapott elektronos fékeződés és a SRIM program által szolgáltatott fékeződési értékek összehasonlítását a 4.3.3. ábrán mutatom be.



4.3.3. ábra. Protonnyaláb SRIM által és a Bethe-Bloch formula által számolt elektronos fékeződése PTFE-ben.

Az irányváltást a kollektív kis szögű szóródást leíró formulával vettem figyelembe (2.1.3. egyenlet). Itt szintén Gauss-eloszlású véletlenszám-generálással valósítottam meg a véletlenszerűséget. A nyaláb ezeket a formulákat alkalmazva a tömbi anyagban a 4.3.4. ábrán látható pályák mentén halad. Ez a „SRIM-szerű” trajektória-kép (összehasonlítva a 3.2.3. ábrával) azt sugallja, hogy a szimulációba implementált formulák viszonylag jól közelítik a protonok valós mozgását. Elvitathatatlan azonban, hogy néhány elhanyagolást tartalmaz:

- 1) amint a proton energia ~ 45 keV alá csökken, a szimuláció úgy tekinti, hogy abban a pozícióban a proton megáll és lerakja a töltését, mivel a korrekciók nélküli Bethe-Bloch formula innen lefelé már negatív értékeket vesz fel;
- 2) az előző pontnak, illetve a túlbecsült fékeződési értékeknek köszönhetően az 1 MeV-es protonok úthosszának várható értéke a SRIM által meghatározott $16,2 \mu\text{m}$ -rel szemben csak körülbelül $14 \mu\text{m}$;
- 3) nagyszögű szóródásokat nem vesz figyelembe.



4.3.4. ábra. Ideális (pontszerű, monoenergiás) nyaláb tömbi anyagban történő mozgásának trajektóriái, és az energia trajektória mentén történő változása. A beesési szög 1° . A vákuum felőli oldalon látható a bejövő nyaláb és a visszaszóródott részecskék pályája is.

Ezeket az elhanyagolásokat elfogadtam, ugyanis a szimuláció célját, nevezetesen, hogy egy közelítő becslést adjon a visszaszóródott protonok számáról, jó közelítéssel kielégíti.

A lerakott töltések relaxációja

A kapilláris falára lerakott töltések mind a töltéssűrűség-különbségek, mind pedig a saját maguk által létrehozott potenciálkülönbségek hatására relaxálódni próbálnak, vagyis lassan a földpotenciálú elektródák felé mozognak. A 2.3. fejezetben leírtakkal ellentétben, a felületi letöltődést feltételeztem domináns folyamatnak. Ezt arra alapoztam, hogy a kapilláris falvastagsága igen nagy ($\approx 400\mu\text{m}$), és a kapilláris külső felülete sincs vezető réteggel bevonva, így az esetlegesen a tömbi anyag felé elmozduló töltéseknek aztán a külső felületen ugyanúgy felületi transzportfolyamattal kellene a ki- és bejárathoz, a földpotenciált jelentő elektródák felé eljutni. A

belső felületen lejátszódó transzportfolyamatot a modellben a diffúziós árammal vettem figyelembe, amelyet a diffúziós egyenlet ír le. Ennek alakja 1 dimenzióban

$$J = -D \frac{\partial \rho}{\partial z} , \quad (4.3.3.)$$

ahol J az áramsűrűség, $\rho(z)$ a töltéssűrűség, z a hosszúsági helykoordináta, D pedig a (konstans) diffúziós együttható. Ha időfejlődést akarunk vizsgálni, az egyenletet kombinálni kell a töltésmegmaradást kifejező kontinuitási egyenlettel,

$$\nabla J + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 , \quad (4.3.4.)$$

amelyből egydimenziós esetben az alábbi összefüggést kapjuk:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = D \frac{\partial^2 \rho}{\partial z^2} . \quad (4.3.5.)$$

Ezt az egyenletet kellett tehát megoldani a kapilláris mindkét oldali falán, amelyre az időben haladó, térben centrális (Forward Time Centered Space, FTCS) véges differencia közelítést alkalmaztam (3.2.9. és 3.2.12. egyenletek).

Peremfeltételnek a kapilláris ki- és bejáratánál rögzített értéket adtam meg (Dirichlet-peremfeltétel). Mivel a kísérletek során a minták itt vannak rögzítve a földpotenciálon lévő mintatartóba, ezért ennek értékét mindkét (jobb és bal) oldalon $\rho_0 = \rho_N = 0$ -nak vettem. A kapilláris falvastagsága a kísérletekben $s \approx 400 \mu\text{m}$ volt, a szimulációban viszont nincs falvastagság (vonalszerű fal), így a töltések áramútja néhány százalékkal rövidebb, amit elhanyagoltam.

A használt FTCS séma a diffúziós egyenletre feltételeesen stabil, tehát az egyenletben szereplő paramétereknek ki kell elégíteniük a stabilitási feltételt, hogy oszcillációk nélküli, értelmezhető eredményt kapjunk. 1 dimenzióban a feltételt az alábbi összefüggés adja meg:

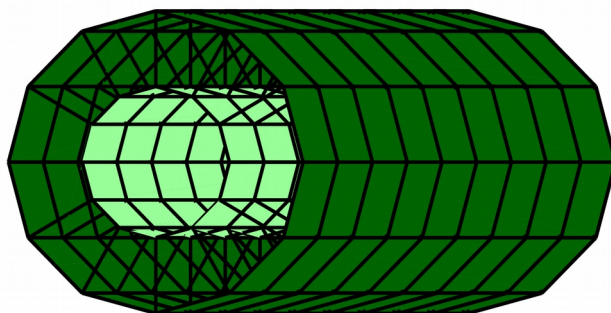
$$\frac{D \cdot \Delta t}{\Delta z^2} \leq \frac{1}{2} . \quad (4.3.6.)$$

Mivel a D együttható a rendszerre jellemző konstans érték, ezért következésképpen a rácsméretet és a töltésrelaxálódás időlépését (ami nem ugyanaz, mint a részecskék időlépése) kell úgy megválasztani, hogy a rendszer kielégítse a stabilitási kritériumot.

A 2D szimulációs modell és az első eredmények az [E2] publikációban kerültek közlésre.

A 3 dimenziós modell

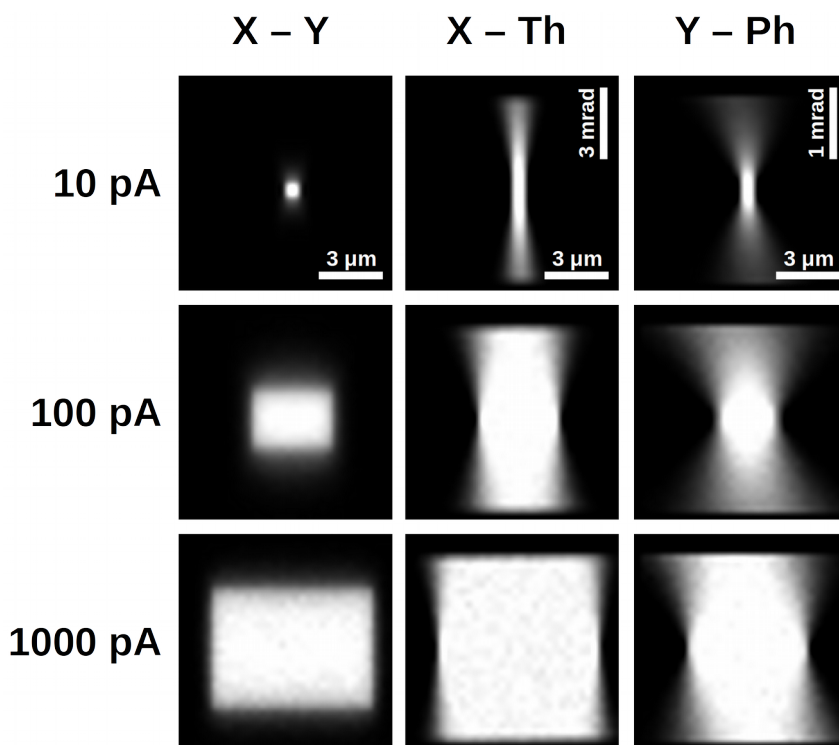
A kapilláris fala ebben az esetben már a kísérletek során használt kapilláris fizikai méreteinek (hossz, belső átmérő, falvastagság) megfelelő csővel volt reprezentálva, amelyet longitudinális, tangenciális és radiális irányban is diszkretizálni kellett (4.3.5. ábra). Radiálisan $n=2$ rácspontot alkalmaztam, azaz a rács a kapilláris külső és belső felületét tartalmazta, a tömbi anyagban nem voltak rácspontok.



4.3.5. ábra. A kapilláris falának diszkretizációja a 3 dimenziós modellben. A jobb láthatóság érdekében az ábrán a kapilláris hosszirányban csak 10 rácspontra van felosztva.

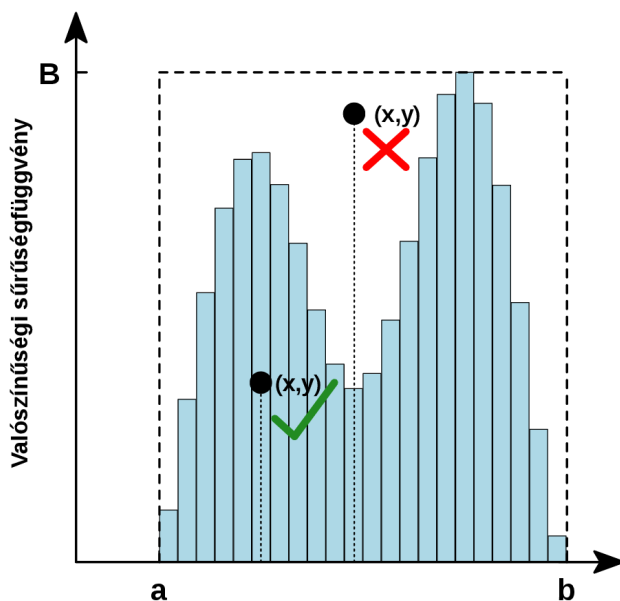
A bejövő nyaláb laterális és szögeloszlása

A realisztikusabb modell érdekében a WinTRAX programmal különböző tárgyrés beállítások (nyalábintenzitások) esetén sok részecskére először legeneráltam az $X - Y$, $X - Th$ és $Y - Ph$ fázisterek intenzitásképét (a Θ (theta) és Φ (phi) a WinTRAX által használt jelölés a nyaláb optikai tengellyel bezárt szögére a $Z - X$ illetve a $Z - Y$ síkban). Ezt a 4.3.6. ábrán mutatom be 3 tipikus nyalábintenzitás esetén.



4.3.6. ábra. A WinTRAX által generált laterális- és szögeloszlások. A méretek az adott oszlopon belül mindhárom intenzitásra érvényesek. Látható, hogy az intenzitás növelésével a divergencia nem (2. és 3. oszlop függőleges tengelye), csak a geometriai nyalábméret nő (1. oszlop függőleges és vízszintes, illetve a 2. és 3. oszlop vízszintes tengelye).

Ezeknek a szürkeskálás képeknek a világosság-értékei adták a generálni kívánt eloszlás valószínűségi sűrűségfüggvényének diszkrét értékeit. Így ezekből a képekből a Dob-Elvet módszerrel már le tudtam generálni a kapillárisba beérkező részecskék X és Y koordinátáit, valamint a hozzájuk tartozó Θ és Φ szöveget. A generálás elvi rajza a diszkrét sűrűségfüggvény miatt a 3.2.1. ábrához képest a 4.3.7. ábrának megfelelően módosul.



4.3.7. ábra. A Dob-Elvet módszer módosítása diszkrét sűrűségfüggvényből történő véletlenszám-generálásra. Az oszlopok számát és szélességét a WinTRAX intenzitásképek (4.3.6. ábra) felbontása és pixelmérete határozza meg.

A lövedékionok mozgásának leírása

A newtoni mozgásegyenletben (4.3.1. egyenlet) a 3 dimenzióknak megfelelően $\mathbf{r}=(r_x, r_y, r_z)$ és $\mathbf{E}=(E_x, E_y, E_z)$ szerepelt. A belső felületeken

lévő töltések terét továbbra is a $Q_{\text{árnyékolt}} = \frac{2}{\varepsilon+1} \cdot Q$, míg külső felületen lévő

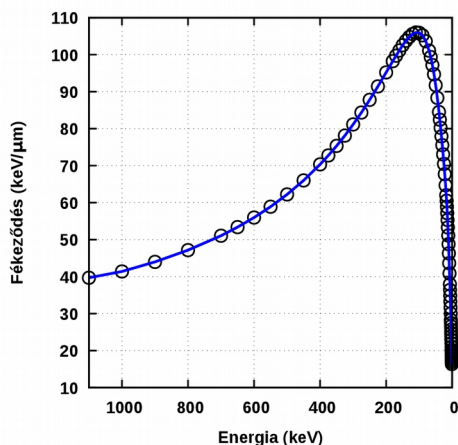
töltéseket a tömbi anyagban a $Q_{\text{árnyékolt}} = \frac{\varepsilon-1}{\varepsilon+1} \cdot Q$ dielektromos árnyékolás

csökkenti. A mozgásegyenlet megoldásához ebben az esetben is a sebesség-Verlet módszert alkalmaztam, a dt lépésközt azonban adaptív módszerrel adtam meg. Azaz, az algoritmus futás közben, a hiba megbecslésével, szükség esetén automatikusan kisebb lépésközt állít be. Ezzel időt lehet megtakarítani, ugyanis ahol a differenciálegyenlet megoldása lassan változik, ott nagyobb időlépésekkel haladhat a lövedék ion, ahol azonban gyorsan változik, ott kisebb lépésköztre való átállással lehet megtartani a kívánt pontosságot.

A részecskék energialeadása és irányválttatása az anyagban

A 2 dimenziós modellben használt formulák a kisenergiás tartományban nem írják le helyesen a részecskék viselkedését, ezért az analitikusan számolás helyett a SRIM programmal „méréseket” végeztem, és az abból kapott eredményeket használtam fel a protonok tömbi anyagban történő mozgásának leírására.

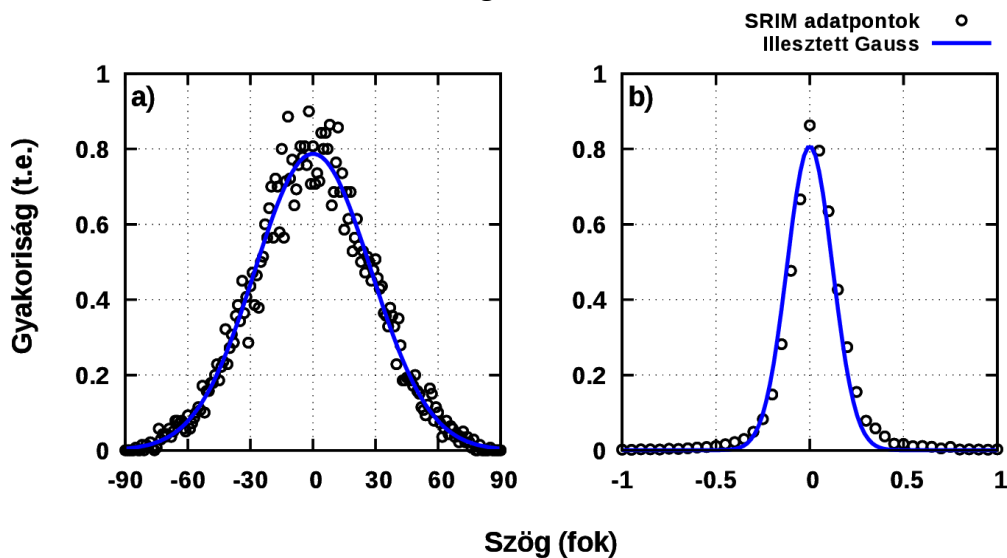
Először az energiavesztési értékeket határoztam meg a SRIM-mel teflonban, 1 keV – 1,1 MeV protonenergiára. Azért volt szükség 1 MeV felé menni az energiával, mert a nyalábenergia szórása miatt a névleges értéknél nagyobb energiák is előfordulnak. A program jól definiált energiákra számolja ki a fékeződést, amelyeket a 4.3.8. ábrán mutatok be. Jól látható, hogy a nyaláb lassulásával a fékeződés értéke növekszik, majd 100 keV körül maximuma van (Bragg-csúcs), ahonnan meredeken csökken.



4.3.8. ábra. A fékeződés nyalábenergiától való függése teflonban. SRIM szimuláció.

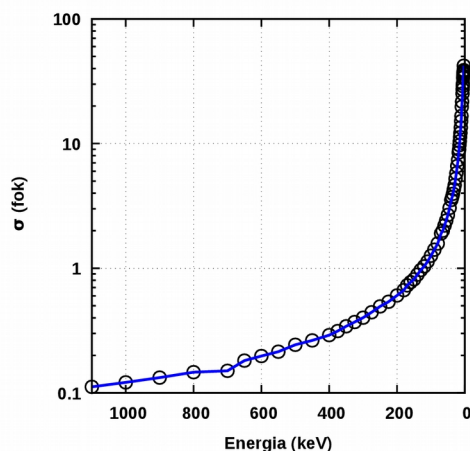
Ezt követően megvizsgáltam a nyaláb irányváltását. A SRIM a targeten keresztülhaladó részecskék kilépési szögeit adatfájlba írja ki, amelyből szögeloszlást készítettem. Ehhez először a fékeződési értékek kiszámolása során figyelembe vett protonenergiákkal indított pontszerűen belépő nyaláb vékony teflon fólián való áthaladását modelleztem. A targeten keresztülhaladó nyaláb szögeloszlását Gauss-eloszlásúnak feltételeztem, amelynek várható értéke a radiális szimmetria miatt 0° (irányválttatás nélküli továbbhaladás), a szórását pedig illesztéssel határoztam meg. A 4.3.9. ábrán egy-egy

hisztogramon mutatom be az 5 keV és 1000 keV energiájú protonok 0,1 μm vastagságú PTFE targeten történő áthaladása utáni irányeloszlását, és a SRIM adatpontokra illesztett Gauss-görbét. Bár nagy energián a vékony targeten áthaladó nyaláb csak kis számú kölcsönhatásban vesz részt, ezért az illesztés nem tökéletes, de ezt a közelítést elfogadtam.



4.3.9. ábra. A pontszerű protonnyaláb szögeloszlása 0,1 μm vastag PTFE fólián való keresztülhaladás után **a)** 5 keV és **b)** 1000 keV bejövő energia esetén. SRIM szimulációk eredménye.

A SRIM szimulációt sok energia esetén lefuttatva a 4.3.10. ábrán látható eloszlást kapjuk. A kapilláris szimulációkban ezeket az adatpontokat táblázatos formában a számítógép memóriájában eltároltam. A részecske irányváltoztatásnak szórását a mindenkor energiája körüli adatpontokhoz tartozó szögszórás-értékek közti lineáris interpolálással számoltam ki. Az irányváltoztatás szögét az így kiszámolt szórással rendelkező Gauss-eloszlással generált véletlenszám adta meg.



4.3.10. ábra. Az ideális nyaláb 0,1 μm vastag PTFE fólián történő áthaladása utáni szögeloszlásának szórása a SRIM szimulációk szerint.

A lerakott töltések relaxációja

A helyfüggő koncentráció- és potenciálkülönbségek által indukált töltésmozgás pontosabb leírására a Nernst-Planck egyenlet lehet megfelelő választás,

$$J(\mathbf{r}, t) = -D \left[\nabla \rho(\mathbf{r}, t) + \frac{ze}{k_B T} \rho(\mathbf{r}, t) \nabla \phi(\mathbf{r}, t) \right], \quad (4.3.7.)$$

ahol $J(\mathbf{r}, t)$ ismét az áramsűrűség, $\rho(\mathbf{r}, t)$ a töltéssűrűség, $\phi(\mathbf{r}, t)$ az elektromos potenciál, D a diffúziós együttható, z az ion töltése, e az elemi töltés, k_B a Boltzmann-állandó, T pedig a hőmérséklet. Az időfejlődéshez az egyenletet ismét a kontinuitási egyenlettel (4.3.4. egyenlet) kell kombinálni, így az alábbi formulát kapjuk:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = D \left[\nabla^2 \rho + \frac{ze}{k_B T} T (\nabla \rho \nabla \phi + \rho \nabla^2 \phi) \right]. \quad (4.3.8.)$$

Noha ezt a modellt ionok oldatokban történő mozgásának leírására használják, korábban már ugyanezre a problémára, a kapilláris falán történő töltésátrendeződésre is sikerrel alkalmazták [39]. Az egyenlet megoldására ismét az időben haladó, térben centrális módszert alkalmaztam.

A D diffúziós együtthatót a μ elektromos mobilitásból az Einstein-összefüggéssel lehet leszámaztatni. A közöttük fennálló kapcsolatot az alábbi formula adja meg [10]:

$$\mu = \frac{e}{k_B T} D \quad . \quad (4.3.9.)$$

Az elektromos (elektron és lyuk) mobilitás az anyagi minőségtől függő fizikai mennyiség, értékére azonban nehéz pontos irodalmi adatot találni, ráadásul a felületi és tömbi együttthatók értéke különböző lehet. A szakirodalom szerint teflonban a töltések mozgásában a lyuk mobilitás a domináns, értéke

$\mu_{lyuk} \approx 10^{-14} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ [94]. A szimulációban tömbi mobilitásnak ezt az értéket használtam, a felületi mobilitás értékét pedig a szakirodalomban található szimulációs munkákhoz (pl. [14]) hasonlóan ennél két nagyságrenddel nagyobbra választottam, tehát az értékük $\mu_{tömbi} = 10^{-14} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ és $\mu_{felületi} = 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$.

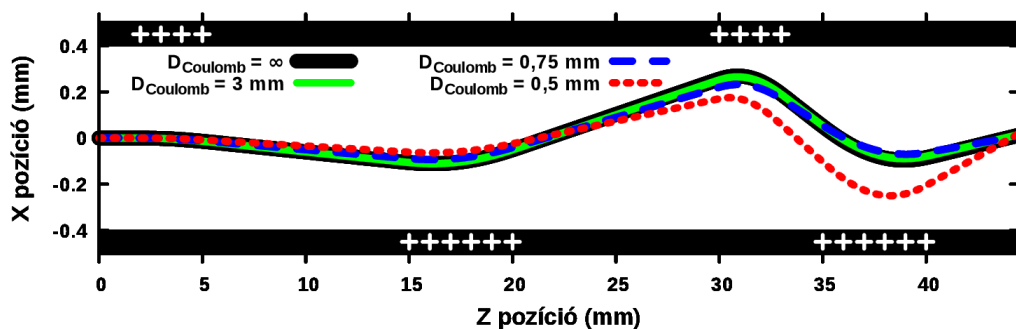
Peremfeltételeket három dimenzióban kellett megadni. A kapilláris be- és kijáratánál, azaz a longitudinális dimenzióban megmaradt a Dirichlet-peremfeltétel. A kapilláris kerülete mentén (tangenciálisan), mivel a kapilláris fala önmagába záródik, periodikus peremfeltételt adtam meg. A radiális dimenzióban pedig, azaz a külső és belső felületekre, Neumann típusú peremfeltételt adtam meg, $\frac{\partial \rho_{belső}}{\partial t} = \frac{\partial \rho_{külső}}{\partial t} = 0$, feltételezve azt, hogy a kapilláris falai és a vákuum között nincs semmilyen töltéscserélő folyamat.

A Nernst-Planck egyenletre nem lehet előre, egzakt módon definiálni a stabilitási feltételt, mivel az a rendszerben dinamikusan jelen lévő potenciálkülönbségekkel változik. Így egyszerűen csak a megfigyelésekre hagyatkoztam, és azt tapasztaltam, hogy nem jelentkeztek olyan instabilitások, amelyek miatt értelmezhetetlen eredményeket adott volna a szimuláció.

Optimalizálás

A szimuláció futásidejének csökkentésére mindkét modell esetében a molekuláris dinamikai szimulációk során jól ismert egyszerűsítéseket alkalmaztam. Az egyik ilyen egyszerűsítés a részecskék közötti kölcsönhatás, esetemben a Coulomb-taszítás hatótávolságának maximalizálása. Mivel a Coulomb-kölcsönhatás hatótávolsága végtelen, azt a távolságot, amelyen kívül elhanyagoltam a kölcsönhatást, ismét csak tesztekkel határoztam meg. Ehhez a

kapillárisra a részecske elindítása előtt ismét „mesterségesen” töltéseket vittem föl. Ezt követően egyedi részecskéket indítottam, miközben a Coulomb-kölcsönhatás maximális távolságát addig változtattam, amíg azt nem tapasztaltam, hogy már nem okoz jelentős változást a további növelés. Az eredményt a 4.3.11. ábrán szemléltetem.

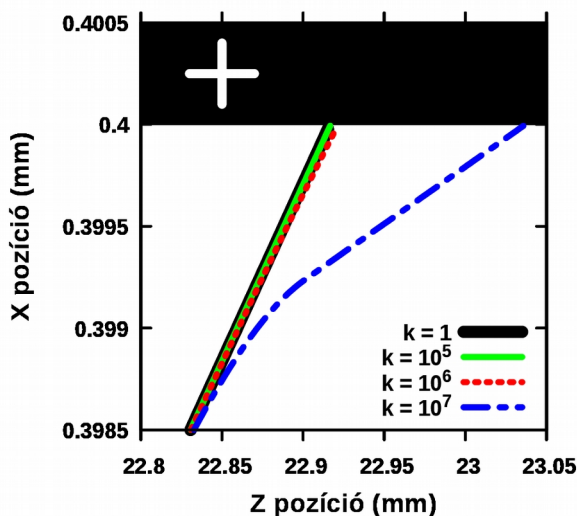


4.3.11. ábra. A Coulomb kölcsönhatás D hatósugarának hatása a részecskék trajektóriájára.

A tesztek alapján a repülő proton körüli néhány mm-es sugarú körön kívül eső töltések Coulomb-taszítását elhanyagolva a proton trajektória már gyakorlatilag megegyezik az elhanyagolást mellőző megoldással, azonban futásidő jelentősen lerövidíthető, így a szimulációk futtatása során minden esetben a $D_{Coulomb} \geq 3$ mm levágási távolságot alkalmaztam. A szakirodalomban fellelhető munkákban mások is sikerrel alkalmazták a 3 mm-es kritikus hatótávolságot [34].

Egy másik bevált egyszerűsítés a futásidő csökkentésére, amelyet az ionterelésről szóló szakirodalomban szinte minden szimulációs munkában alkalmaztak, hogy minden egyes, a kapilláris falába csapódó q töltésű ion a falon $Q = k \cdot q$ töltést helyez el. Ennek köszönhetően a szimuláció lefutása során jóval kevesebb részecske pályájának számolására van szükség. A k értékét a szakirodalomban lassú, nagy töltésű ionokra tipikusan néhány ezer [31] és néhány tízezer [100] közé szokták választani. Az 1 MeV-es protonok esetén végzett tesztek azt mutatták, hogy még $k = 10^6$ esetén is csak minimálisan módosul a beérkező ion pályája. Ezt a 4.3.12. ábrán mutatom be.

Én a tesztek alapján a szimuláció futtatása során minden esetben $k \leq 10^5$ értéket használtam.

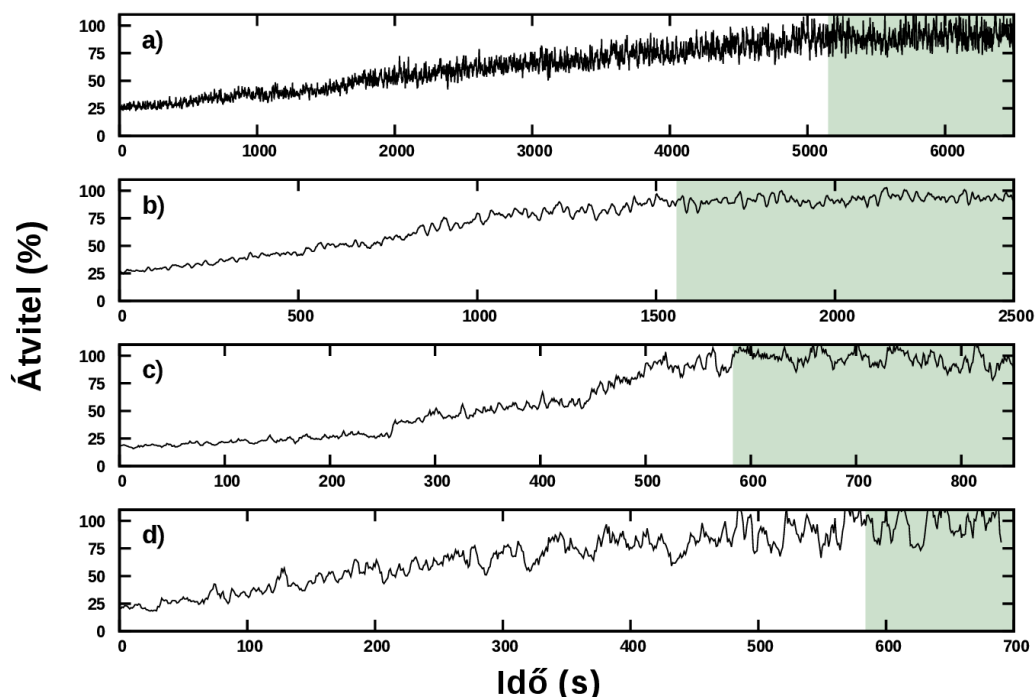


4.3.12. ábra. A kapilláris falára lerakott $k \cdot q$ töltés hatása a következő proton trajektóriájára. Látható, hogy $k=10^6$ esetén kissé, $k=10^7$ esetén pedig már jelentősen változik a pálya.

4.4. Az átvitel időfejlődése és az átvitel hatásfokának intenzitásfüggése

Kísérleti eredmények

A nyaláb beengedését követően a Faraday-csészén mérve minden bejövő nyalábbintenzitás esetén 20 százalék körüli azonnali átvitelt tapasztaltunk. Az átvitel minden esetben azonnal fokozatos emelkedésbe kezdett, míg nem kialakult a stabil állapot, amely aztán a nyaláb megfogásáig meg is maradt (4.4.1. ábra). Az átvitel minden esetben 100%-hoz közeli hatásfoknál stabilizálódott, azonban észrevehető, hogy a különböző bejövő intenzitások esetében a stabil átvitel kialakuláshoz szükséges idő különbözően alakult: nagyobb bejövő intenzitások esetén kevesebb idő alatt beállt az egyensúlyi állapot.



4.4.1. ábra. Az ionterelés mért időfejlődése néhány bejövő nyalábintenzitás esetében. Zöld dobozokkal jelöltem azokat a tartományokat, ahol a kialakult átvezetést stabilnak tekintem. **a)** 8 pA; **b)** 22 pA; **c)** 44 pA és **d)** 170 pA bejövő nyalábintenzitás.

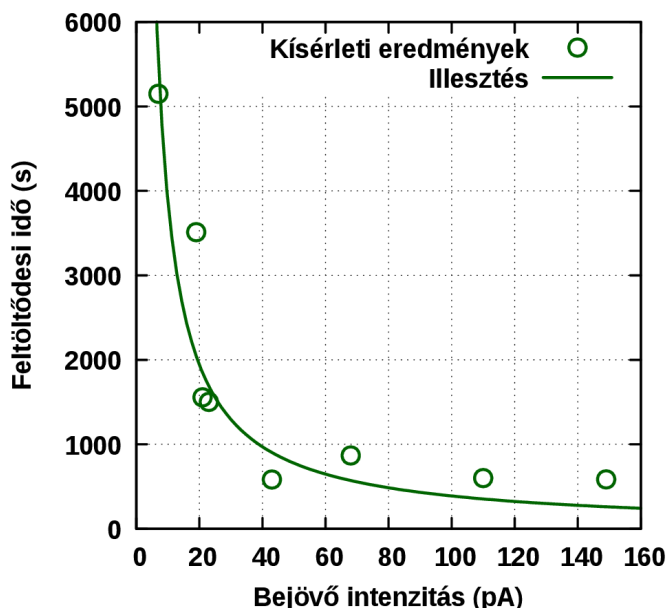
Ezért megvizsgáltam a stabil átvitel kialakulásához szükséges idő bejövő nyalábintenzitástól való függését. Először meghatároztam a különböző intenzitásokra, hogy mennyi idő alatt áll be a stabil átvitel, azaz mennyi idő alatt töltődik fel teljesen a kapilláris fala. Feltételeztem, hogy a nyaláb eltérítéséhez szükséges töltésmennyiség (potenciál) független a nyaláb intenzitásától. Azonos töltésmennyiséget azonban nagyobb nyalábáram rövidebb idő alatt tud felhalmozni a kapilláris falán a

$$t = q/I \quad (4.4.1.)$$

összefüggésnek megfelelően, tehát fordított arányosságot vártam. A kísérleti adatokra ezért a 4.4.1. egyenletnek megfelelő reciprok függvényt illesztettem, amelynek a paramétere a q , tehát a beinjektált töltésmennyiség volt. Az eredményeket a 4.4.2. ábrán mutatom be. Az illesztés paramétere $q = 38,75 \pm 0,68 \text{ nC}$ -nak adódott, de fontos megjegyezni, hogy ez nem a kapilláris falára lerakott töltés nagysága, mivel az idő előrehaladtával a bemenő

áram egyre nagyobb hányada ki is jön a kapilláris kijáratán. Az átviteli adatokból a kapilláris falára lerakott töltésmennyiség maximális értékét

$$q_{\text{lerakott}} = 22,07 \pm 8,94 \text{ nC} \text{ -nak becsültem meg.}$$

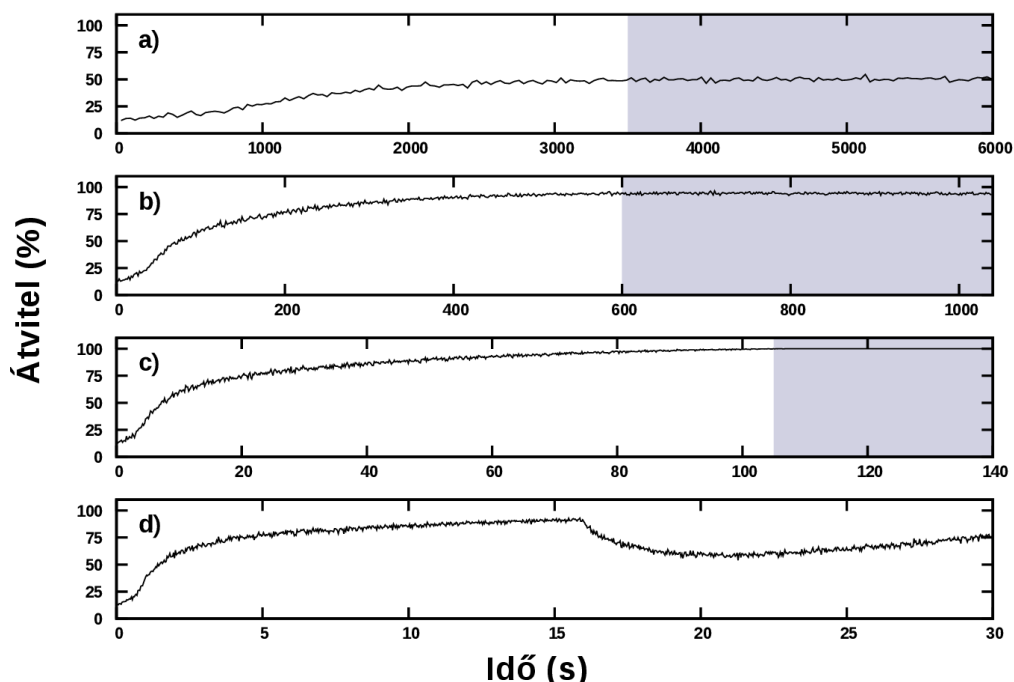


4.4.2. ábra. A stabil átvitel kialakulásához szükséges idő bejövő intenzitástól való függése a kísérletek során.

Az átvitel intenzitásfüggésének kísérleti eredményei az [A1] publikációban kerültek közlésre.

Szimulációs eredmények

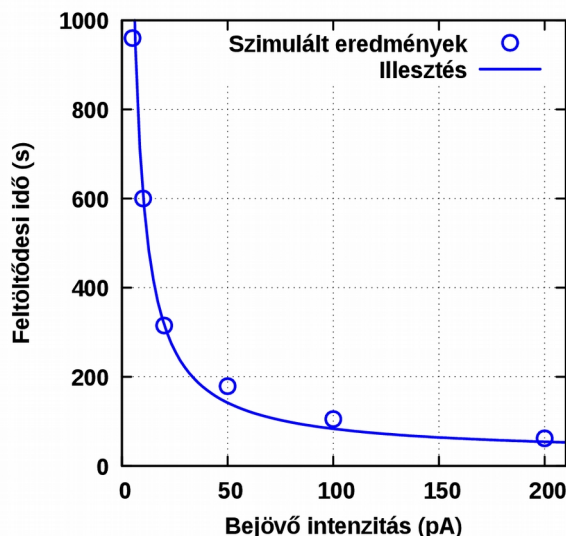
A szimuláció nagy előnye, hogy tetszőleges bejövő nyalábintenzitással lehet futtatni. Ez a kísérletre nem igaz, mivel néhány pA intenzitás alatt a nyaláb keresztmetszetében jelenlévő inhomogenitások miatt már nem lesz stabil a nyalábáram, és túl kis intenzitást mérni sem tudunk pontosan. A túl nagy intenzitást pedig az ionforrás fényessége limitálja. Így a szimulációkat a kísérleteknél tágabb intenzitás-tartományban futtattam, hogy megnézzem, mi történik a kísérletileg nem vizsgálható tartományban. Az eredményt a 4.4.3. ábrán mutatom be.



4.4.3. ábra. Átviteli görbék a 2D szimulációban különböző bejövő intenzitások esetén: **a)** 0,5 pA; **b)** 10 pA; **c)** 100 pA és **d)** 500 pA. A kék dobozok azt a tartományt jelölik, ahol az átvitel stabilizálódott.

Az eredményekből több következtetést is levontam, amelyeket az alábbi pontokban részletezek.

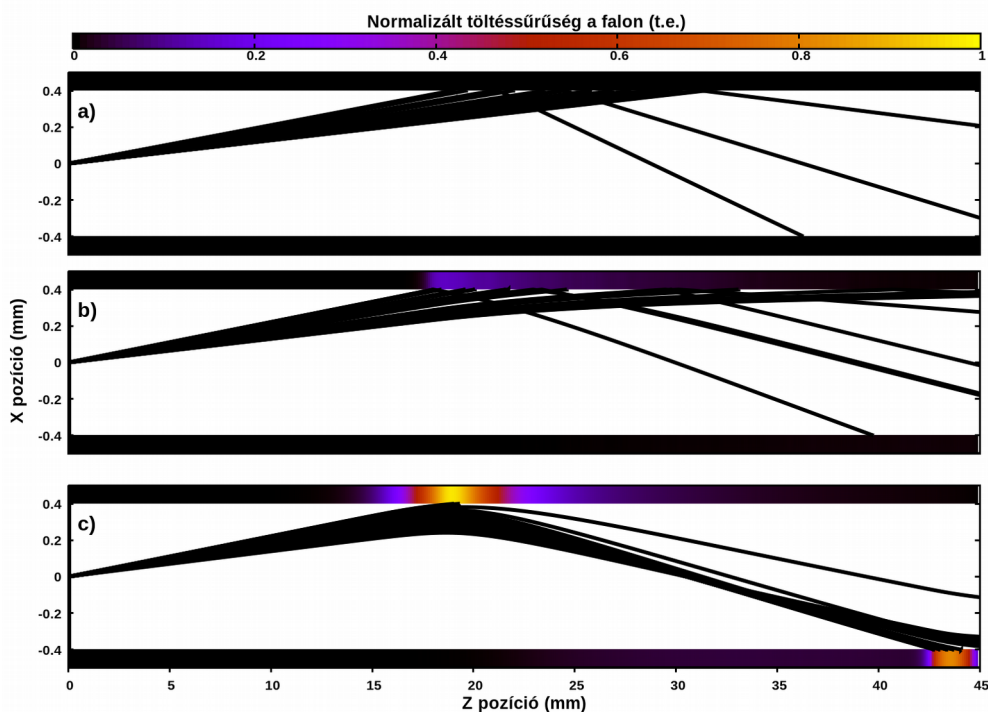
- A szimulációban szintén minden bejövő nyalábintenzitás esetén megfigyelhető egy 15 százalékos azonnali relatív átvitel. Az átvitel itt is azonnali emelkedésbe kezd, majd egy adott értéknél stabilizálódik.
- Itt is jelentkezik egy tág intenzitás-tartományban a nagy hatásfokú, stabil átvitel. Ez a beállított diffúziós együtthatóval néhány pA és néhány száz pA között volt megfigyelhető. A kísérletekhez hasonló módon, a stabil, nagy hatásfokú átvitel kialakulásához szükséges időt több nyalábintenzitás esetén a 4.4.1. egyenlettel illetve a 4.4.4. ábrán látható eredményt kapjuk. Fontos megjegyezni, hogy az abszolút idők, és így a beinjektált töltésmennyiségek eltérnek a kísérletek során mért és meghatározott adatoktól, de nem szabad elfelejteni, hogy a modell csak 2 dimenzióban dolgozik, abszolút egyezést tehát nem is várhatunk el.



4.4.4. ábra. A maximális átvitel kialakulásához szükséges idő a szimulációban különböző bejövő nyálábintenzitások esetében.

- Kiderült továbbá, hogy kellően nagy intenzitás esetén elméletileg akár 100 százalék is lehet az átviteli hatásfok. A 4.4.3. ábrán 100 pA intenzitásnál ez már megfigyelhető. Ez korlátlan ideig nem maradhat meg, ugyanis a véges nagyságú elfolyó áramot a nyálábnak kell kompenzálni, ez azonban elhanyagolható.
- Kellően kis intenzitás esetén azonban az átvitel kisebb hatásfoknál stabilizálódik. 0,5 pA-nél például már csak 50% körüli a relatív átvezetés.
- Túl nagy intenzitást használva azt tapasztaltam, hogy az emelkedő átviteli görbe egyszer csak elkezd leesni, majd újra emelkedik. Ez nem egy pillanatszerű esemény, hanem egy folytonos átmenettel rendelkező, dinamikus folyamat. Ennek az okát keresve megvizsgáltam a részecskék trajektóriáit, és azt találtam, hogy a kapilláris falán képződő elsődleges töltésfolt túltöltődik. Ez a túltöltődés a nyálábot az átellenes falra irányítja át (4.4.5. ábra), aminek következtében egy részleges blokkolódási effektus lép fel. Az átellenes oldalon így ismét egy töltésfolt kezd el kialakulni, amellyel aztán stabilizálódni tud az átvitel. Ez a jelenség magyarázhatja azt a kísérletek során tapasztalt

megfigyelésünket, hogy nagy bejövő intenzitások esetében rendszerint instabil átvitelt tapasztaltunk, de ennek kísérleti igazolásra szisztematikus vizsgálatok szükségesek.



4.4.5. ábra. A szimuláció által jelzett részecsketrajektóriák a kapillárisban 500 pA bejövő intenzitás esetén. **a)** Közvetlenül a nyaláb beengedésekor; **b)** 40% relatív átvitelnél és **c)** a részleges blokkolódás miatti átvitel-leesésnél.

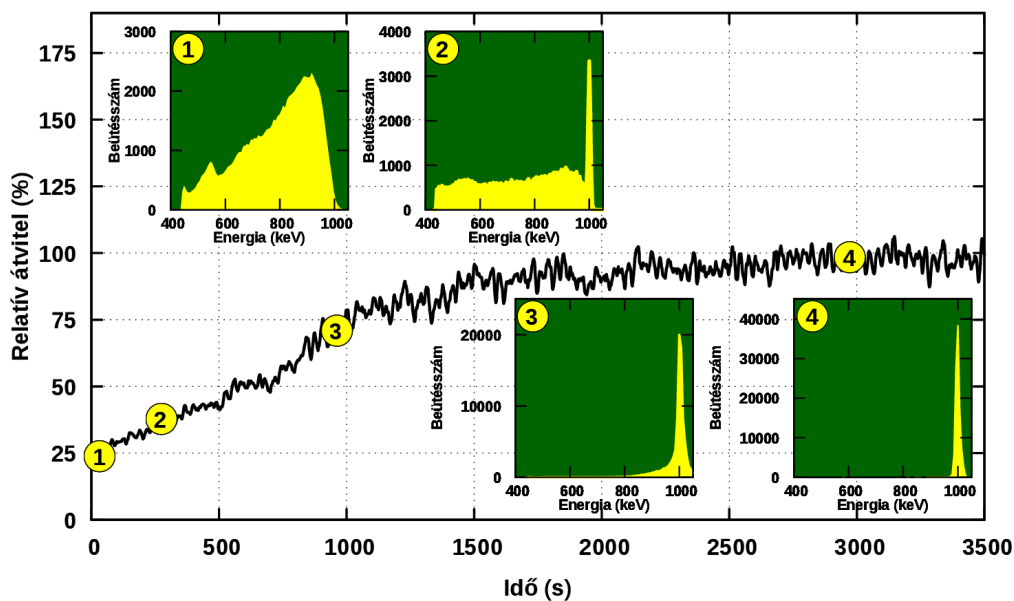
- Az ábrákról az is egyértelművé vált, hogy az átvitel emelkedése során mindig először a nyaláb divergenciája miatt kisebb beesési szögben érkező protonok átvezetése történik meg. Ha az átvitel nem éri el a 100%-ot, akkor a divergencia miatt nagyobb szög alatt érkező részecskék továbbra is felfutnak a kapilláris falára, és vagy lerakják a töltésüket, vagy szóródást szenvednek.

Az átvitel intenzitásfüggésének szimulációs eredményei az [A3] publikációban kerültek közlésre.

4.5. Az energiaspektrum időfejlődése

Kísérlet

Az átvitel különböző szakaszaiban megvizsgáltuk az átvezetett nyaláb energiaspektrumát (4.5.1. ábra). Először közvetlenül a nyaláb kapillárisba való beengedése után, amikor az átvitel még kicsi, körülbelül 20 százalék. Ekkor a felvett részecskespektrumban csak a bejövő nyalábenergiánál kisebb energiák fordulnak elő, amelyet a részecskéknél a kapilláris atomjain történő rugalmas előre szóródásának, ezáltal az ütközések során fellépő energiaveszteségnek tulajdonítottunk.



4.5.1. ábra. Az energiaspektrumok relatív átvitelével történő időfejlődése a kísérletekben.

Később, amikor az átvitel emelkedni kezdett, ismét spektrumot gyűjtöttünk. Itt már azt tapasztaltuk, hogy megjelent a spektrumban az eredeti, $E_0 = 1 \text{ MeV}$ -es részecskeenergia. Ennek az oka, hogy az átvezetett nyaláb nagyobbik része még mindig előre szóródásnak köszönhetően jut át, de a részecskék egy kis hányada már ütközések – ezáltal energiaveszteség – nélkül halad át a kapillárison. Az átvitel emelkedésével ráadásul ez az E_0 csúcs

egyre jelentősebbé vált, 70 százalék átvitel körül már az átvezetett részecskéknek csak igen kis hányada szenvedett energiaveszteséget.

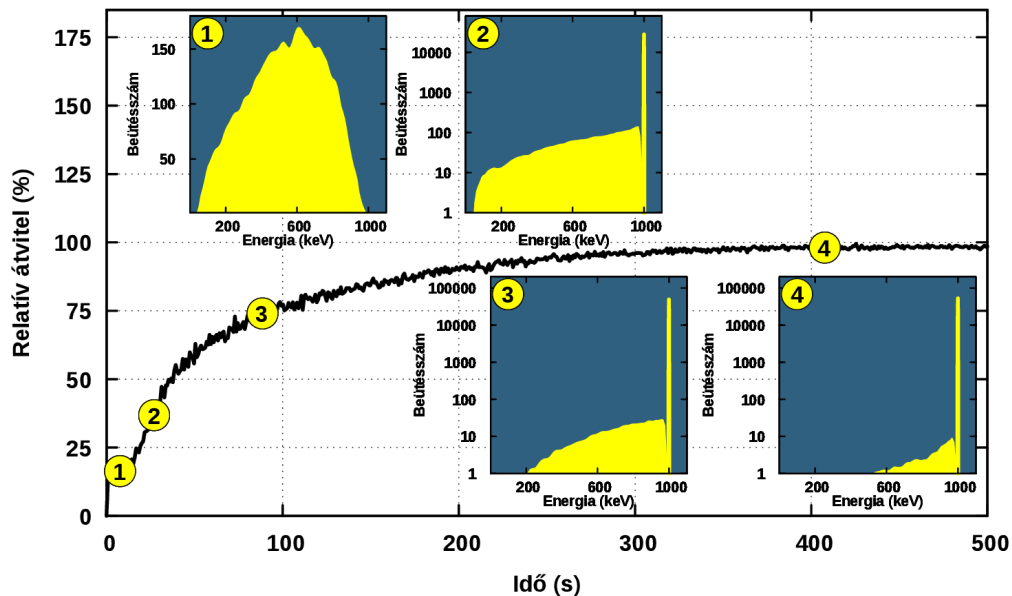
Végül, amikor az átvitel 100 százalékhoz közel stabilizálódott, a felvett energiaspektrumban gyakorlatilag csak az E_0 csúcs látható, az energiaveszteséget szenvedett részecskék aránya elhanyagolhatóan kicsiny, tehát az átvezetett nyaláb egésze megtartotta eredeti mozgási energiáját. Az

E_0 csúcs szélességét illesztéssel határoztam meg, ami így 17 keV-nek (FWHM) adódott, tehát gyakorlatilag a detektor energiafeloldását kaptuk vissza.

A kísérletek során általános tapasztalat volt, hogy az átvitel különböző szakaszaiban mért energiaspektrumok jellege nem függött a bejövő intenzitástól.

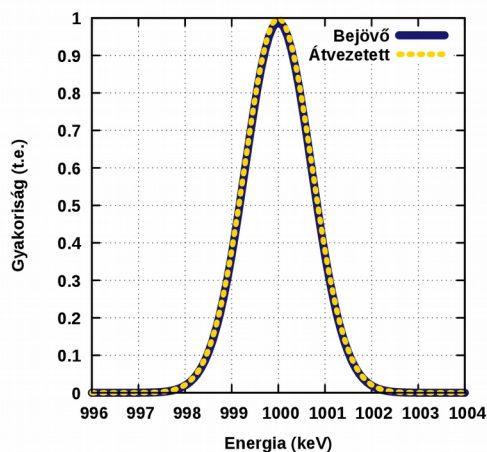
Szimuláció

A szimulációban az energiaspektrumok hasonlóan időfejlődést mutattak, bár itt a szóródott részecskék spektrumát az energiaveszteség kiszámításához felhasznált Bethe-Bloch formula határozza meg, ezért a kísérletek során mért spektrumokkal nem mutatnak tökéletes egyezést. A szimuláció jól reprodukálta azt a megfigyelést, hogy az átvitel különböző szakaszaiban mért energiaspektrumok jellege nem függ a bejövő nyaláb intenzitásától. Az eredményeket a 4.5.2. ábrán mutatom be. Az ábrán azokat az energiaspektrumokat, amelyeknél már az E_0 csúcs is megjelent, féllogaritmikus skálán ábrázoltam, hogy a keskeny, de magas csúcs ne zavarja a spektrum többi részének láthatóságát. A szimulációban ugyanis a detektálás energiafeloldását elméletileg csak a használt számábrázolás pontossága határozza meg, azaz elhanyagolhatóan kicsi. Gyakorlatilag azonban 1 keV-nek állítottam be, tehát a kijövő részecskék energiáját a legközelebbi egész számra kerekítettem.



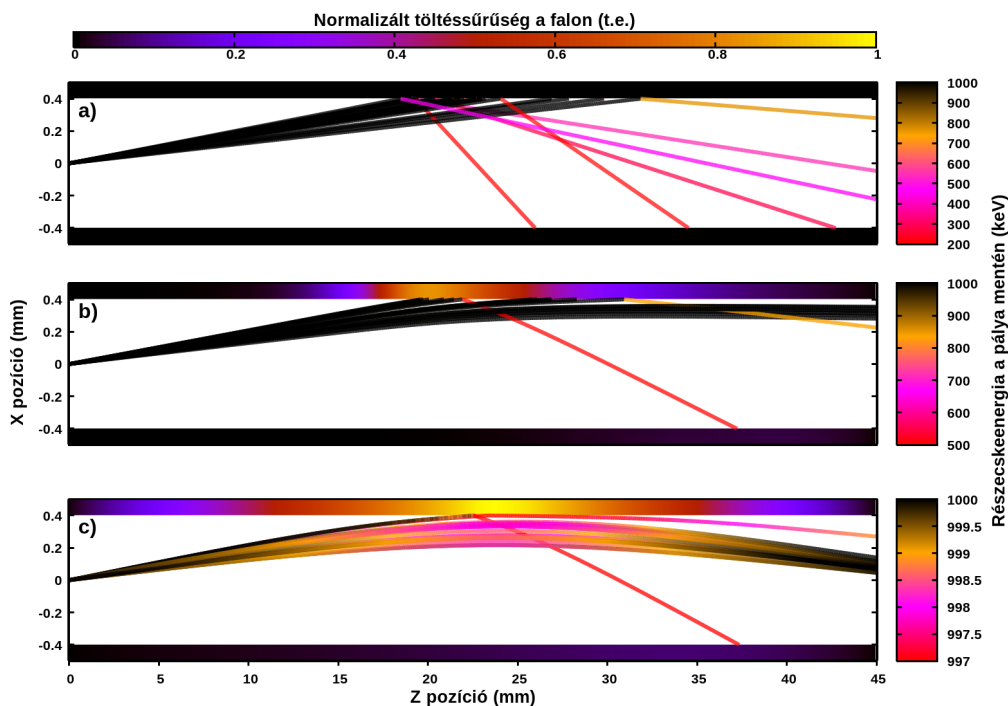
4.5.2. ábra. Az energiaspektrumok relatív átvitelrel történő időfejlődése a 2D szimulációban.

Ezt az 1 keV-es energiafeloldást használva összehasonlítottam az átvezetett nyaláb E_0 csúcsát a bejövő nyalábéval, és azt a megfigyelést tettem, hogy az átvezetett nyaláb energiaszórása a bejövő nyalábéval gyakorlatilag megegyezik (4.5.3. ábra). Ebből azt a következtetést vontam le, hogy a kapillárison tereléssel átjutó nyalábfrakció energiaszórását csak az ionok forrása határozza meg.



4.5.3. ábra. A bejövő és az átvezetett nyaláb E_0 csúcsának Gauss-illesztése a szimulációban. A bejövő nyaláb energiaszórása 1,5 keV féltértékszélességűnek volt beállítva, a kijövő nyaláb pedig jól illeszkedik rá, tehát az átvezetés során nem romlik a nyaláb energiafeloldása.

A 2 dimenziós szimulációs modellt használva megvizsgáltam még az átvitel különböző szakaszaiban az egyes részecskék trajektóriáit. A 4.5.4. ábrán látható, hogy a nyaláb beengedésekor az összes részecske felfut a kapilláris falára, amelyből valamennyi előre szóródik (ez adja a kezdeti, kb. 15 százalékos átvitelt), valamennyi pedig az átellenes falra szóródik és ott rakja le töltését. Természetesen az is lehetséges, hogy többszörös szóródással aztán mégis kijut egy részecske a kapillárisból, de ennek jóval kisebb a valószínűsége, mivel 1) az átellenes falra való átszóródáshoz eleve egy nagyobb szögű szóródás kell, aminek kisebb a valószínűsége, és 2) oda pedig a geometriából kifolyólag nagyobb lesz a beesési szög, így onnan még kisebb valószínűséggel tud a részecske ismét úgy szóródni, hogy az kijusson a kapillárisból.



4.5.4. ábra. A szimuláció által jelzett részecsketrajektóriák a kapilláris belsejében 100 pA bejövő intenzitás esetén. **a)** Közvetlenül a nyaláb beengedése után. **b)** 50 százalék átvitelnél. **c)** 90 százalék fölött stabilizálódott átvitelnél. A kapillárisok falán a töltéssűrűségek egymásra normálva vannak, így az őket jellemző (felső, vízszintes) színskála mindhárom ábrára érvényes.

A 4.5.4. ábráról több következtetést is levontam, amelyeket az alábbiakban részletezek.

- Először is, megfigyelhetővé vált a részecskék mozgási energiájának dinamikus változása a trajektóriájuk mentén: a nagy elektromos potenciálok közelében a részecskék energiát veszítenek, míg attól eltávolodva visszanyerik azt, miközben az energiafeloldás megmarad. Ez a jelenség az elektrosztatikus tér konzervatív tulajdonságának köszönhető. Az ábra c) részén látható, hogy a primer töltésfolthoz közel elhaladó részecskék akár 2 keV-et is veszíthetnek kinetikus energiájukból, tehát a kapilláris falán kialakuló potenciál a kV tartományba kell essen!

- Másrészt azt is észre lehet venni, hogy a szóródott részecskék iránya és energiája összefüggésben van egymással: minél nagyobb a szóródás szöge, szisztematikusan annál nagyobb az adott részecske energiavesztesége. Ez összhangban van a rugalmas szóródás formulájával, de ez a megfigyelés motiválta a szimulációs kód 3 dimenzióban történő implementálását, amellyel aztán a nyaláb térbeli energiaoszlását és annak időfejlődését vizsgáltam meg.
- Amint a 4.4. fejezet legvégén már kiemeltem, az átvitel, és ezáltal az energiaspektrumok időfejlődését az okozza, hogy a beérkező részecskék beesési szöge a nyaláb divergenciája miatt egy viszonylag tág szög-tartományt fog át. Először azok a részecskék tudnak tereléssel átjutni a kapillárison, amelyek a névleges értéknél kisebb szög alatt érkeznek, mivel az ő transzverzális sebességkomponensük kisebb, tehát kisebb potenciál is elég ahhoz, hogy még a falnak ütközés előtt elveszítsék ezt a falra merőleges irányú sebességkomponensüket. Ha a falon kialakuló potenciál elég nagy ahhoz, hogy a legnagyobb beesési szögű ionok is elveszítsék transzverzális irányú sebességüket, ideiglenesen kialakulhat a 100 százalékos relatív átvezetés. Ebben az esetben a stabilizálódott átvitelnél felvett energiaspektrumban csak E_0 energiájú protonok lehetnek, a bejövő nyalábnak megfelelő félértékszélességgel.
- Végezetül pedig látható, hogy a kapillárisból kilépő nyaláb emissziós szöge az átvitel növekedésével változik. A nyaláb beengedésekor még nem látható egy jól definiált kimeneti irány, azonban 50 százalék átvitelnél már egyértelműen látszik, hogy a szóródás nélkül keresztüljutó részecskék nagyjából a kapilláris tengelyével párhuzamosan jönnek ki belőle. A maximális, stabil átvitelnél pedig látható, hogy a nyaláb eltérése már meghaladja a kapilláris dőlésszögét. Mivel a 4.4. fejezetben bemutatott, 500 pA bejövő árammal végzett számítások azt mutatták, hogy az eltérés olyan nagy, hogy a töltésfolt a nyalábot a kapilláris átellenes oldalára tereli át, ezért egyértelmű, hogy az eltérés mértéke a bejövő nyalábintenzitástól függ. Mennyiségi következtetést itt nem akartam levonni, de ez a megfigyelés adott motivációt az átvezetés dinamikájának kísérleti vizsgálatára, amit

a 4.6. fejezetben tárgyalok. A szimuláció megjósolta tehát, hogy az átvezetett nyaláb eltérése dinamikus viselkedést mutat.

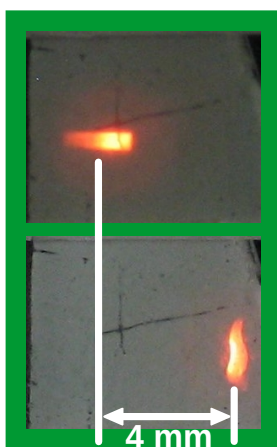
Az energiaspektrumok mért időfejlődésének összefoglalása az [A1] publikációban került közlésre, a szimulációs munkával kiegészített részletesebb munka pedig az [A5] publikációban jelenleg elbírálás alatt áll.

4.6. Az emissziós szög és annak intenzitásfüggése

Kísérlet

A nyaláb eltéréseit kísérletileg a korábban bemutatott fluoreszcens ernyős módszerrel vizsgáltuk. Először kis, néhány pA bejövő nyalábinszenzitást használtunk. A terelés kifejlődését követően, a kialakult nyalábfoltról digitális fényképet készítettünk. Ez a 4.6.1. ábrán látható.

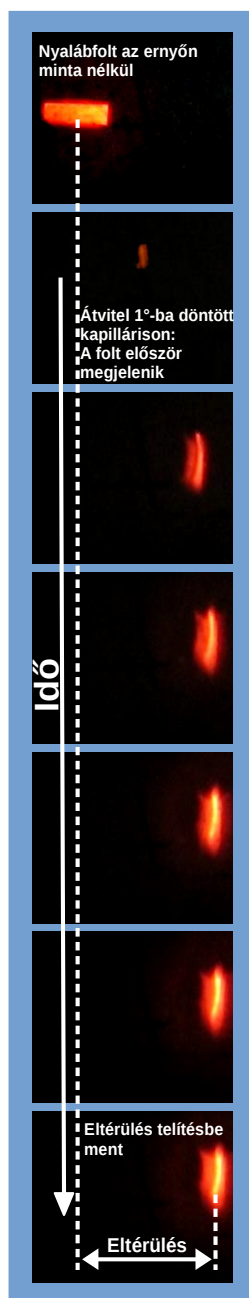
A fényképek méretkalibrációja után meghatározható, hogy a nyalábfolt eltérése kb. 4 milliméter, amely nagyjából 1 fokos eltérésnek felel meg. Azt a megállapítást tettük tehát, hogy a kapillárisból kijövő nyaláb eltérése szöge a döntésszöggel megegyezik. Ilyet a szakirodalomban mások is megfigyeltek, HCl nyalábbal [27].



4.6.1. ábra. A nyaláb vízszintes eltérése a kapilláris elforgatásának hatására. Felső kép: a nyalábfolt képe az ernyőn minta nélkül, azaz az optikai tengelyben érkező nyaláb. Alsó kép: a nyalábfolt képe 1 fokba forgatott kapillárison keresztülvezetve. A két nyalábfolt vízszintes (X) koordinátájának különbsége adja a minta elforgatása miatti eltérést.

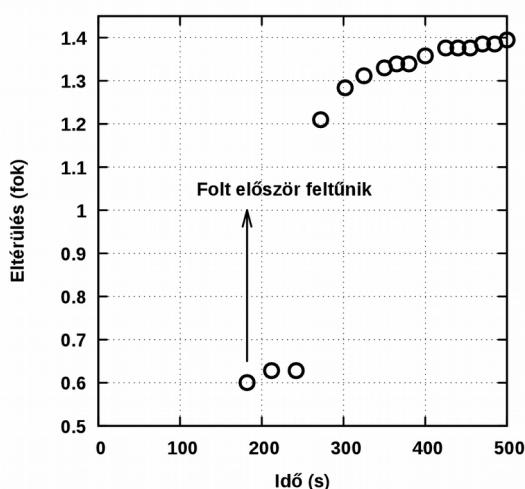
Már itt is észrevehető, hogy a nyalábfolt alakja is változik: az X irányban összébb nyomódik, Y irányban pedig széthúzódik. Ennek kvantitatív meghatározását a 4.8. fejezetben ismertetem.

Később, a szimulációs munka során észrevettem és a 4.5. fejezet végén már tárgyalt megfigyelés hatására egy nagyobb bejövő intenzitással kísérletileg is megvizsgáltam az eltérést. Mivel a szimuláció nagyobb intenzitások esetén dinamikus viselkedést jósolt, ezért a kísérletben is ezt vártam. Így aztán egy nagyobb, 110 pA bejövő intenzitású nyalábot használtam, és a nyalábfoltokról time-lapse fotósorozatot készítettem. Néhány tipikus fotó látható a 4.6.2. ábrán.



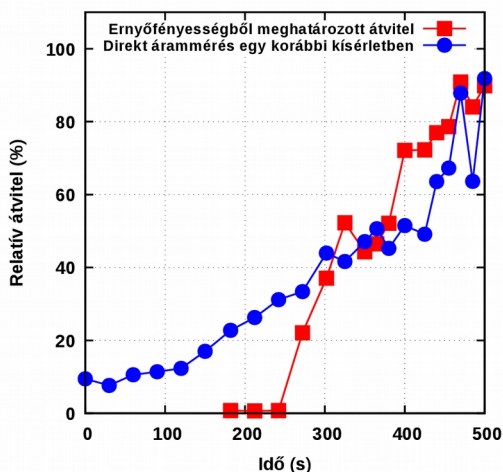
4.6.2. ábra. A nyalábfolt dinamikus viselkedése a fluoreszcens ernyőn 110 pA bejövő nyalábintenzitás esetén. A legfelső fotó az optikai tengelyben érkező nyaláb képe, alatta az 1°-ba forgatott mintán átvezetett nyaláb képei láthatók az idő előrehaladtával. Adott időpillanatban a nyaláb eltérülését az adott képen rögzített és az optikai tengelyben érkező nyalábfolt vízszintes (X) koordinátáinak különbsége adja.

Látható, hogy az eredeti nyalábfolthoz képest az idő előrehaladtával a nyalábfolt pozíciója valóban változik, azaz az eltérítés szöge növekszik, ami aztán telítésbe megy. A fényképekről leolvasni csupán a távolságokat lehet, de a geometria alapján ez szögértékekre átszámítható. A szögekre átváltott mennyiségi eredmények láthatóak a 4.6.3. ábrán. A 110 pA bejövő intenzitással az eltérülés $\approx 1,4^\circ$ -nál éri el a telítési értéket. Ez azt jelenti, hogy az átvezetett nyaláb itt már nem a kapilláris tengelyével párhuzamosan jön ki a abból, hanem a nyalábintenzitástól függően egy attól különböző irányban.



4.6.3. ábra. A nyaláb eltérülésének időfejlődése a kísérletben. A bejövő nyaláb intenzitása 110 pA volt.

Amint azt a 4.2. fejezet végén bemutatottam, az eltérülési kísérlet során használt fluoreszcens ernyőt is sikerült indirekt módon intenzitás-meghatározásra használni. A 4.6.4. ábrán bemutatom a 4.6.2. ábra fényképeiből számított relatív átviteli intenzitás-trendet. A görbe mellé egy korábbi, hasonló bejövő nyalábintenzitással, de a Faraday-csészés elrendezéssel (a 4.4. fejezetben bemutatott módon) mért átviteli görbét is tettem. Látható, hogy kellően nagy átvitel esetén, amikor az átvezetett nyalábfolt már egy viszonylag kis területre koncentrálódik, jól egyezik a két görbe. A fluoreszcens ernyőt is sikerült tehát a kapillárison átvezetett nyalábintenzitás meghatározására alkalmazni.

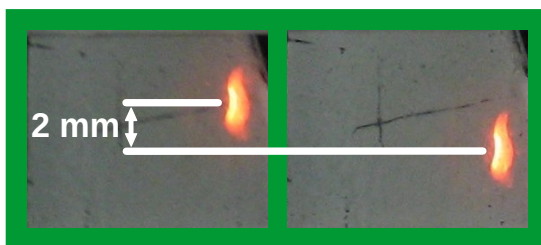


4.6.4. ábra. Relatív átviteli görbék a kísérletben, 110 pA bejövő intenzitás esetén. A kék színű görbe a fluoreszcens ernyő segítségével lett meghatározva, a piros színű görbe pedig direkt áramméréssel egy korábbi kísérletben.

A nyaláb eltéréssel kapcsolatos kísérletekről két publikáció jelent meg. A kis intenzitásnál meghatározott statikus eltérés az [A2], a nagyobb intenzitásnál megfigyelt dinamikus eltérés pedig az [A4] publikációban került közlésre.

4.7. A töltésállapot meghatározása

Az átvezetett nyaláb töltésállapotát a 4.2.4. ábrán bemutatott elrendezéssel határoztuk meg, a 4.6. fejezetben tárgyalt kísérlet során. Az átvezetés kialakulását követően a nyalábfoltról digitális fényképet készítettünk az elektrosztatikus eltérítő lemezpár ki- és bekapcsolt állapotában. Az eredmény a 4.7.1. ábrán látható. Az ernyőt azért kellett úgy pozicionálni, hogy a nyaláb a jobb oldali szélén legyen, hogy a 0 fokos beállítás esetén áthaladó (referencia) nyalábfolt is felvehető legyen (ez volt a 4.6.1. ábra felső képe).



4.7.1. ábra. Az 1 fokba forgatott kapillárison átjutó nyaláb függőleges irányú eltérése az elektrosztatikus eltérítő lemezpár hatására. A két képen nyalábfolt a vízszintes (X) pozíciója azonos. Bal oldali kép: a lemezpár leföldelt állapotában; jobb oldali kép: a felső lemezen 2,7 kV nagyfeszültség.

A fényképek kiértékelése során meghatároztam, hogy a 2,7 kV nagyfeszültség a nyalábot teljes egészében 2 mm-rel lefele tolja el. Ez pontosan megegyezik a nyalábenergiának és az elrendezés geometriájának megfelelő várakozásokkal.

A megfigyelésből tehát egyértelműen azt a következtetést lehet levonni, hogy az átvezetett nyaláb megtartja eredeti töltésállapotát, azaz nem vesz fel elektront, nem semlegesítődik. Ez a tulajdonság szintén az ionterelésnek az egyik velejárója és egyben követelménye, tehát ezzel a vizsgálattal bezárólag elmondhatjuk, hogy az átvezetést valóban a terelési jelenség okozza.

A töltésállapot meghatározásával kapcsolatos eredmények az [A2] publikációhoz kapcsolódnak.

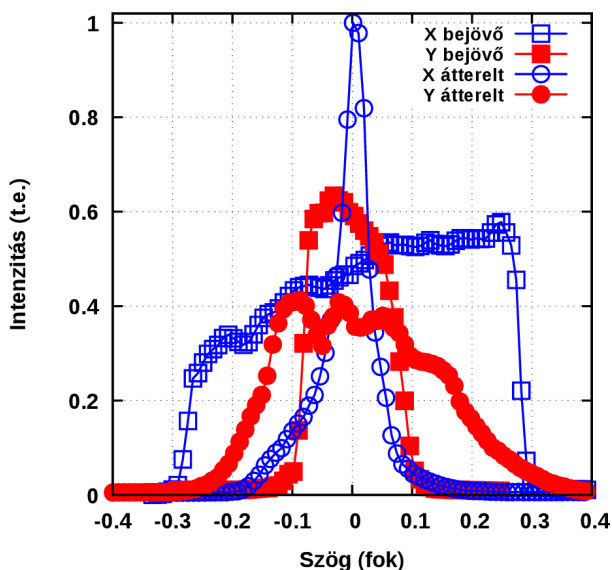
4.8. A nyaláb térbeli eloszlása

Kísérlet

Mint már a 4.3. fejezetben szó volt róla, a bejövő nyaláb divergenciája körülbelül $0,3^\circ$ és $0,1^\circ$ az X illetve az Y síkban. Megvizsgáltam, hogy hogyan változik ez a kapillárison áterelt nyaláb esetében. Ezt a 4.6. fejezet második felében tárgyalt, a nyaláb dinamikus viselkedését vizsgáló kísérlet során készített fényképekből határoztam meg, a stabilizálódott átvitel esetén.

A divergencia meghatározásához a digitális fényképekből – az intenzitás meghatározáshoz hasonlóan – a fényesség információkat gyűjtöttem ki, szintén

a GNU Octave program használatával, de ebben az esetben a laterális pozíció függvényében. A vízszintes (X) divergenciához a fényképek pixelsorait, a függőleges (Y) divergenciához pedig a fényképek pixeloszlopait felösszegeztem. Az intenzitásra átkonvertálás itt is a 4.2.5. ábrán bemutatott kalibrációnak megfelelően történt. Az eredményeket a 4.8.1. ábrán mutatom be.



4.8.1. ábra. A bejövő és az átvezetett nyaláb szögeloszlása a kísérletben. A görbék a jobb olvashatóság kedvéért nullára centráltak és normáltak. Látható, hogy a terelt nyaláb az X síkban (forgatási sík) fókuszálódik, az Y síkban pedig defókuszálódik.

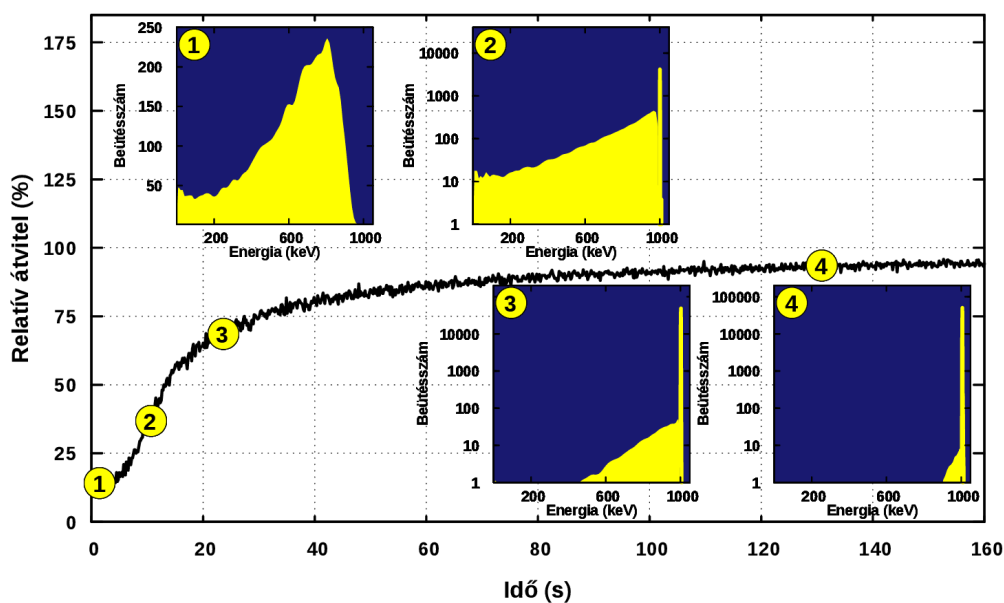
Látható, hogy a nyaláb bejövő állapotához képest az X irányban, azaz a minta forgatási síkjában fókuszálás figyelhető meg: keskenyebb divergencián belül nagyobb az intenzitás. Bár az átvezetett nyaláb kevésbé homogén, és az élek sem olyan jól definiáltak, mint a bejövő nyaláb esetében, nagyjából egy 3-as faktornak megfelelő fókuszáló hatás figyelhető meg, tehát a divergencia az 1/3-ad részére csökkent. Ezzel szemben az Y síkban szélesedett a nyalábfolt, és az intenzitás pedig ennek megfelelően csökkent: itt nagyjából egy 2-es faktornak megfelelő defókuszáló hatás tapasztalható, ami a divergencia duplájára növekedését jelenti.

Ezt a kvadrupól-szerű fókuszáló hatást a kapilláris falán felhalmozott töltések kvadrupól-momentuma okozza, amelyet először sikerült kísérletileg kimutatni.

Szimuláció

A két dimenziós szimuláció által generált trajektória-ábrákból (4.5.4. ábra) sejteni lehetett, hogy a tereléssel és a szóródással átjutott részecskék emissziós szöge különbözik. Mivel a fluoreszcens ernyő az energiára nem érzékeny, és tetszőlegesen kicsi intenzitássűrűséget detektálni sem tud, ezért ennek vizsgálatára végeztem el a szimulációs modell 3D továbbfejlesztését, így a nyaláb valós keresztmetszetében meg tudtam vizsgálni a részecskék energia szerinti eloszlását is.

Először a 4.5.1. és 4.5.2. ábrán bemutatottakhoz hasonló módon leellenőriztem, hogy a 3D modellben is egyezik-e az átvezetés és vele együtt az energiaspektrumok időbeli fejlődése. Ez tehát nem igazán új eredmény, inkább csak egy önellenőrzés arra, hogy a szimuláció megfelelően működik. Az eredményt a 4.8.2. ábrán mutatom be.



4.8.2. ábra. Az átvitel és az energiaspektrumok időfejlődése a 3D szimulációban.

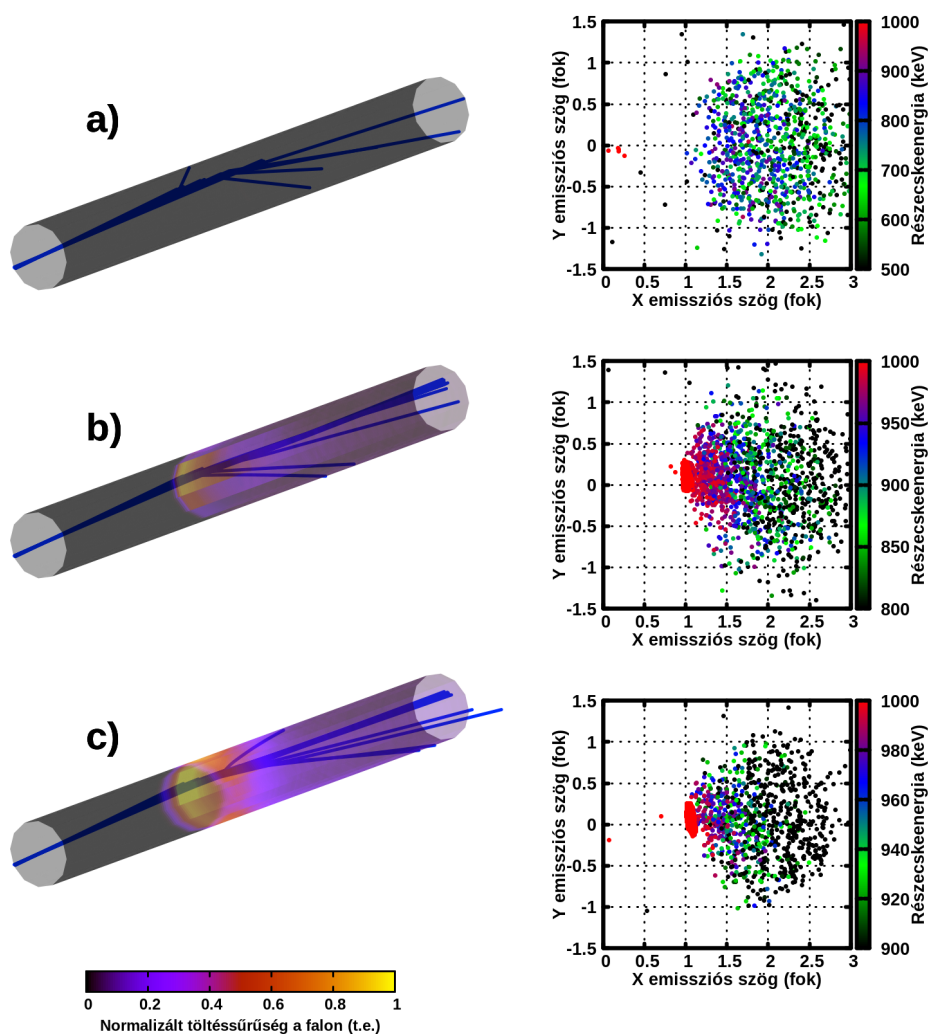
Látható, hogy a 3D szimuláció is nagyon hasonló eredményeket ad mind a 2D szimulációval, mind pedig a kísérletekkel, tehát a modell jól dolgozik. Különböző bejövő nyalábbintenzitásokat használva az átvezetett nyaláb jellege a 3D szimulációban sem mutat változást, de a 2D modell által szolgáltatott

eredményekkel analóg megfigyelések itt is jelen vannak. Egyrészt a tereléssel átjutó nyalábfolt emissziós szöge növekszik a bejövő intenzitással. Ez az átviteli görbe telítődésével szintén telítésbe megy. Másrészt a bejövő intenzitás növekedésével a terelés határfokának telítési értéke is növekszik, tehát stabil állapot beálltával a szóródott részecskék részaránya csökken. Kellően nagy bejövő árammal az átvezetett nyaláb egésze tereléssel jut át a kapillárison, azaz a nyaláb energiaspektrumában csak az E_0 csúcs figyelhető meg.

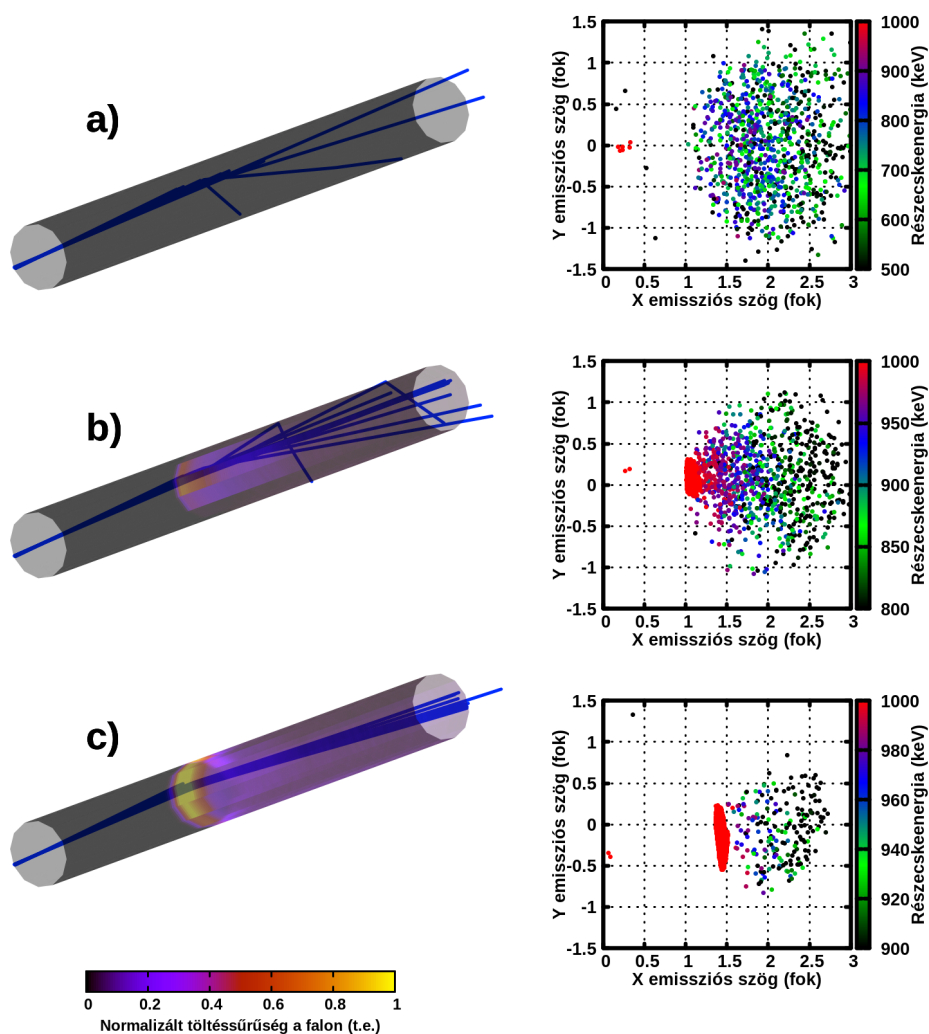
Ezt követően megvizsgáltam, hogy az átvitel különböző szakaszaiban hogyan alakul az átvezetett részecskék emissziós szöge. Az eredményt a 4.8.3. és 4.8.4. ábrákon szemléltetem, 10 illetve 100 pA bejövő intenzitások esetén.

A 4.8.3. és 4.8.4. ábrák a) részén, az átvitel kezdeténél még csak szóródott részecskék láthatóak. Ezek egy nagy területen oszlanak el: a részecskék legnagyobb részének X emissziós szöge a bejövő nyaláb tengelyéhez képest tengelyéhez képest $1 - 3^\circ$, az Y pedig $-1 - 1^\circ$ közé esik. Az ábrák jobb oldali oszlopában látható, hogy az energiájuk is kisebb, mint a bejövő nyalábenergia.

Később, az ábrák b) részén, amikor az átvitel emelkedik, már látható, hogy a nyaláb egy kis része – ami az E_0 csúcsot adja a spektrumban – egy kis területre koncentrálódik. Ez a frakció ekkor még a kapilláris tengelyével közel párhuzamosan, 1° -os szögben jön ki. 10 pA bejövő intenzitás esetén a stabilizálódott átvitel szakaszában (4.8.3. c) ábra) az emissziós szög nem változik jelentősen. Ez egyezik a 4.6. fejezet első felében bemutatott kísérlettel: kis bejövő intenzitás esetén a stabil tereléses átvitelnél az emissziós szög a kapilláris forgatási szögével közel egyenlő. 100 pA bejövő áram esetén azonban az átvitel emelkedésével a tereléssel átjutó frakció emissziós szöge növekszik, a telítési értéke a kísérletek során mérthez hasonlóan a bejövő nyalábirányhoz képest közel $1,4^\circ$. Ez a 4.8.4. c) ábrán látható. Ekkor már az átjutó protonok nagy része energiavesztés nélkül jön ki a kapillárisból, egy jól koncentrált nyalábfoltot alkotva. A kísérletek során megfigyelt fókuszáló-defókuszáló hatás is észrevehető, tehát az X irányú divergencia jelentősen lecsökken, az Y irányú pedig növekszik.



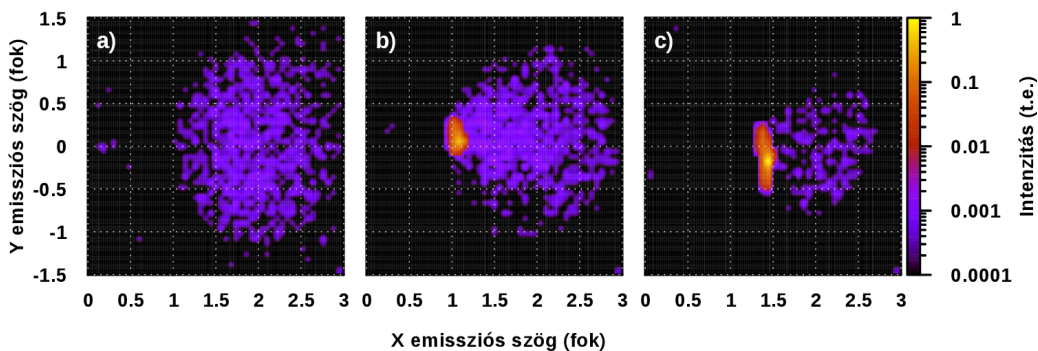
4.8.3. ábra. A 3D szimuláció által jelzett részecsketrajektóriák a kapillárisban (balra) és a kapillárisból kijövő részecskék energiájának emissziós szög szerinti eloszlása (jobbra) 10 pA bejövő intenzitás esetén. **a)** Az átvitel kezdeténél. **b)** A terelés előrehaladott állapotában. **c)** A stabil átvitelnél.



4.8.4. ábra. A 3D szimuláció által jelzett részecsketrajektóriák a kapillárisban (balra) és a kapillárisból kijövő részecskék energiájának emissziós szög szerinti eloszlása (jobbra) 100 pA bejövő intenzitás esetén. **a)** Az átvitel kezdeténél. **b)** A terelés előrehaladott állapotában. **c)** A stabil átvitelnél.

Ebben a szakaszban is jelen lehetnek még szóródott részecskék is, de ezek nem a terelt nyaláb irányában jönnek ki a kapillárisból, hanem továbbra is egy szélesebb szögtartományt fognak át, azon belül viszont az intenzitás-sűrűségük igen kicsi, 2-3 nagyságrenddel kisebb a tereléssel átjutó nyalábfolténál. Ezt a 4.8.5. ábrán mutatom be. A szóródott protonok minden bizonnyal a kísérletek során is jelen voltak, azonban az intenzitás-sűrűségük a fluoreszcens ernyő

detektálási küszöbe alatt volt, a kísérletekben ezért nem látszottak az ernyőn a szóródással átjutó részecskék.



4.8.5. ábra. A nyaláb térbeli eloszlása a 3D szimulációban, 100 pA bejövő intenzitás esetén. **a)** Az átvitel kezdetén; **b)** Az átvitel előrehaladott állapotban. **c)** Stabilizálódott átvitelnél. Látható, hogy a szóródott részecskék intenzitás-sűrűsége elhanyagolható a tereléssel átjutó nyalábéhoz képest.

A divergencia változásának kísérleti meghatározása az [A4] publikációhoz kapcsolódik, míg a nyaláb térbeli eloszlásának szimuláció segítségével megfigyelt viselkedéséből az [A6] publikáció jelenleg előkészítés alatt van.

5. Zárszó, kitekintés

A disszertációban bemutatott munka során elsőként sikerült kimutatni, hogy a MeV energiatartományban is lehetséges a bejövő ionnyaláb szigetelő anyagú kapillárison keresztüli iontereléses (tiszán elektrosztatikus) átvezetése. Kiderült, hogy a minta anyaga, geometriája, valamint a földelt elektródáknak a kapilláris belsejében kialakuló töltésfoltokhoz viszonyított elhelyezkedése kiemelt szerepet játszik a stabil tereléses átvitel megvalósulásában. A szimuláció kidolgozásával lehetőség nyílt jóslatok tételére új paraméterkombinációk esetén is, amelyek további kísérletek sikeres megvalósulásához is hozzájárulhatnak.

Az elért eredmények esetleges gyakorlati hasznosíthatósága is fontos. A dolgozatban bemutatott jelenségek akár új típusú technikai alkalmazások megvalósulását is elősegíthetik (pl. passzív elektrosztatikus kvadrupól lencse), vagy a már megvalósult alkalmazások hátrányainak kiküszöbölésével (pl. a fókuszálás során a szóródás miatti energiavesztés, vagy a csatornahatás során a csatorna elhagyás miatti jelentős intenzitásvesztés) alternatívát jelenthetnek azoknak.

6. Összefoglalás

A PhD munkám során gyors, mikrométerűre fókuszált protonnyaláb szigetelő, egyedi, hengeres makrokapillárisal történő terelését vizsgáltam kísérleti és számítógépes szimulációs módszerekkel. A nyalábenergia 1 MeV volt, a nyalábméret a bejövő intenzitástól függően néhány mikrométer, a beérkező nyaláb tengelyének a kapilláris tengelyével bezárt szöge pedig 1° . A nyaláb divergenciája a Z – X síkban (a minta forgatási síkjában) $0,29^\circ$, a Z – Y síkban pedig $0,09^\circ$. A kapilláris minta anyaga poli(tetrafluoretilén) (PTFE, teflon), a hossza $l \approx 45 \text{ mm}$, a belső átmérője $d \approx 800 \mu\text{m}$, a falvastagsága pedig $s \approx 400 \mu\text{m}$ volt. A nyaláb paramétereit, a kapilláris minta geometriáját és a kapillárisba középpontosan történő nyaláb-beinjektálást figyelembe véve a rendszerre teljesült a geometriai átlátszatlanság feltétele, tehát a bejövő protonnyaláb a kapilláris belső falának ütközött, ott töltéseket halmozott fel. A felhalmozott töltések által keltett elektromos tér a nyalábot a kapilláris kijárata felé irányította, lehetővé téve a tereléses átvezetést.

A kísérleti munka során először egy olyan elrendezést kellett összeállítani, amellyel minden olyan tulajdonsága vizsgálható a nyalábnak, ami alapján azonosítható az ionterelés kialakulása. Ehhez két elrendezésre is szükség volt. Az elsővel az átvezetett nyaláb intenzitását és energiaspektrumát tudtuk mérni, a másodikkal pedig az átjutó részecskék emissziós szögét, töltésállapotát, és közvetett módon az intenzitását. Az átjutó nyaláb intenzitását a bejövő nyaláb százalékos részarányával definiáljuk. A kísérletek reprodukálhatóságának érdekében ki kellett dolgozni a megfelelő mintapozicionálási technikát. Erre optikai mikroszkópos megfigyelést és Rutherford-visszaszórásos spektrometriát alkalmaztunk. A kísérletek során folyamatosan mérni kellett a bejövő nyaláb intenzitását, amire egy nyalábszaggatót használtunk. A bejövő intenzitást néhány pA és 170 pA között változtattuk. Az első elrendezéssel a kapillárison átvezetett nyaláb intenzitását Faraday-csészé segítségével mértük. Az átjutó részecskék energiaspektrumát felületi záróréteges (SB) vagy PIN típusú részecskedetektorral mértük. A második elrendezéssel az átjutó nyaláb eltérülésének mértékét egy fluoreszcens ernyővel tettük láthatóvá, amelyet egy

CCD érzékelős digitális fényképezőgéppel rögzítettünk. Az eltérés nagyságából az emissziós szöget tudtuk meghatározni. Szintén a fluoreszcens ernyő használatával, egy elektrosztatikus eltérítő lemezpár által okozott eltéréstől tudtuk az átvezetett nyaláb töltésállapotát meghatározni. Az ernyő fényerejéből közvetetten az átvezetett nyaláb intenzitását is meg tudtam becsülni.

A kísérletek során megfigyelt folyamatok értelmezésére, és új jelenségek kimutatására Monte-Carlo és molekuláris dinamikai (MD) módszereket alkalmazó szimulációs kódot fejlesztettem, amelyhez a C programnyelvet használtam. A szimuláció fejlesztése két fázisból állt. Először egy egyszerűbb, 2 dimenziós metszettel modelleztem a valóságot (ez a minta forgatási síkja volt). A bejövő nyaláb laterális eloszlását a bejövő intenzitástól függetlenül egy $1\ \mu\text{m}$ félérték szélességű Gauss-eloszlással, az irányát pedig $1\pm 0,29^\circ$ tartományon generált egyenletes eloszlású véletlenszámmal definiáltam. A bejövő nyalábtöltésintenzitást $0,5 - 500\ \text{pA}$ között változtattam. A lövedék ionok mozgását a newtoni mozgásegyenlet sebesség-Velet módszerrel történő megoldásával írtam le. A kapilláris falának ütköző részecskék energiavesztését a Bethe-Bloch formulával, az irányváltoztatást pedig a sokszoros, kis szögű, rugalmas (Rutherford) szóródás formulájával modelleztem. A falra lerakott töltések relaxálódását diffúziós áramnak feltételezve a diffúziós egyenlettel írtam le, amelyre véges differencia közelítést alkalmaztam. Később a szimulációt kiterjesztettem 3 dimenziósra, és sok helyen jelentős pontosítást végeztem rajta. A bejövő nyaláb laterális- és szögeloszlását az Atomki mikroszondájának a WinTRAX ionoptikai modellező programmal számított nyalábmeneteiből generáltam. A kapilláris falában végbemenő energiavesztési- és szóródási folyamatokat a SRIM programmal végzett számítások segítségével írtam le. A falon felhalmozódott töltések koncentráció- és potenciálkülönbségek által indukált mozgására a Nernst-Planck egyenletet alkalmaztam, véges differencia közelítéssel.

A kísérletekben az átvezetés határfoka a bejövő nyaláb intenzitásától függetlenül minden esetben körülbelül 20%-ról indult. Ez azonnali, fokozatos emelkedésbe kezdett és addig folytatódott, amíg ki nem alakult egy stabil, nagy határfokú átvitel. Itt az átvezetés határfoka $90 - 100\%$ közötti volt. A

szimuláció hasonló viselkedést mutatott. Az átvezetés kezdeti értéke 15% körül alakult, ami fokozatos emelkedéssel 90% fölélt telítésbe ment.

A kísérletek során megfigyeltem, hogy a stabil átvezetés kialakulásáig eltelt idő a bejövő nyaláb intenzitásával jó közelítéssel fordítottan arányos: nagyobb intenzitással hamarabb kialakul a stabil tereléses átvezetés. A mérési pontokra illesztett reciprok függvény paraméteréből meghatároztam, hogy $q_{\text{beinjektált}} = 38,75 \pm 0,68 \text{ nC}$ beinjektált töltés szükséges a stabil átvitel kialakulásához. Az átvezetés növekvő részarányát felhasználva pedig megbecsültem, hogy a belső falra lerakott töltés mennyisége $q_{\text{lerakott}} = 22,07 \pm 8,94 \text{ nC}$ kell legyen. A szimuláció jól leírta a kísérletben tapasztaltakat, azaz, hogy a stabil tereléses átvitel kialakulásáig eltelt idő egy széles bejövő intenzitás-tartományban a beinjektált töltésmennyiséggel fordítottan arányos. Ezen kívül a szimuláció rámutatott, hogy az átvezetés határfoka a bejövő nyalábintenzitástól függ. Kellően kis bejövő nyalábbárammal az átvitel kisebb határfoknál stabilizálódik. 0,5 pA-t használva az átvezetés 50%-nál telítődött. Kellően nagy bejövő áramnál pedig ideiglenesen 100%-os átvezetés is kialakult. Ez 100 pA-nél már megfigyelhető volt. 500 pA bejövő áram túl nagy intenzitásnak bizonyult, és a kapilláris belső falának túltöltődése miatt a nyaláb a szemközti falra irányítódott át. Ez a részleges blokkolódás az átvitel határfokának leesésében mutatkozott meg.

A kísérletekben meghatároztam az átvezetett nyaláb átlagos emissziós szögét. Néhány pA bejövő intenzitást használva az emissziós szög a minta forgatási szögével megegyezett, azaz a nyaláb a kapilláris tengelyével párhuzamosan lépett ki belőle. A 2D szimuláció viszont azt jelezte, hogy nagyobb bejövő nyalábintenzitás esetén az eltérés az átvezetés határfokának növekedésével emelkedik, tehát a kilépő nyaláb emissziós szöge dinamikusan változik. Kellően nagy bejövő áram esetén a nyaláb akár a kapilláris szemközti falára is átterelődhet. Ezt a megfigyelést alapul véve nagyobb bejövő árammal ismételt meg a kísérletet. A mérések igazolták a szimuláció által megjósolt dinamikus viselkedést. A nyaláb átlagos emissziós szöge 110 pA bejövő intenzitást használva fokozatos emelkedést mutatott, majd az átvitel stabilizálódásával 1,4°-nál telítésbe ment.

A kísérletek kimutatták, hogy a nyaláb a stabilizálódott átvezetés esetén nem változtatta meg a töltésállapotát (a protonok nem vettek fel elektront a

minta atomjaitól), mivel az alkalmazott elektromos tér a nyalábot teljes egészében eltérítette.

Kísérletileg vizsgáltuk az átvezetett nyaláb energiaspektrumának időfejlődését. Az átvitel kezdetén az átvezetett, 20%-nyi nyalábfrakció teljes egésze energiaveszteséget szenvedett, amit az ütközések miatti rugalmas szóródás során fellépő energiaveszteségnek tulajdonítottunk. Az átvitel emelkedésével az átvezetett nyaláb energiaspektrumában megjelent a bejövő nyalábenergiának megfelelő E_0 csúcs, amelynek részaránya az átvitel növekedésével egyre jelentősebb lett. A stabil átvitel kialakulásakor az átvezetett nyaláb egésze energiaveszteség nélkül jutott át a kapillárison, a részecskedetektor energiafeloldásának megfelelő energiaszórással. Ezt az ionterelés kialakulásának tulajdonítottuk. A szimuláció jól reprodukálta a tapasztalt időbeli fejlődést, melyet így értelmezni tudtam. A részecsketrajektóriák analizálásával megállapítottam, hogy ennek oka a nyaláb divergenciája. Azok a lövedékionok, amelyek a névleges döntési szögnél kisebb beesési szög alatt érkeznek, hamarabb tudnak tereléssel átjutni a kapillárison, mivel a kisebb transzverzális sebességkomponens miatt alacsonyabb potenciál is elég az elektrosztatikus átvezetésükhöz. Ha a kialakuló potenciál elég nagy ahhoz, hogy a legnagyobb beesési szöggel érkező proton is elveszítse a transzverzális sebességkomponensét még a falnak ütközés előtt, akkor kialakulhat a 100% átviteli hatásfok. Ezen kívül a szimuláció rámutatott, hogy a kapilláris belsejében a részecskék kinetikus energiája a trajektóriák mentén a kialakult potenciáltérnek megfelelően dinamikusan változik, annak ellenére, hogy a kijövő nyaláb energiaszórása megegyezik a bejövő nyalábéval.

A kísérletek során megállapítottam, hogy az átvezetés során a nyaláb divergenciája megváltozik. A stabilizálódott átvitel esetén az X irányú divergencia a bejövő nyaláb divergenciájának harmadára csökkent, az Y irányú divergencia pedig a duplájára emelkedett. Ezzel egy kvadrupól-típusú fókuszáló hatást sikerült azonosítani. A 3 dimenziós szimuláció azt is megmutatta, hogy a szóródással és tereléssel átjutó nyalábfrakció emissziós szöge különböző. Az átvitel kezdetén, amíg csak előre szóródással jutnak át a protonok a kapillárison, az átvezetett nyaláb széles szög-tartományt fog át, azon belül viszont kicsi az intenzitás-sűrűsége. Az átjutó részecskék nagy részének X irányú emissziós szöge a bejövő nyaláb tengelyéhez képest $1 - 3^\circ$, az Y irányú pedig $-1 - 1^\circ$

között van. Később, amint megjelenik a tereléssel átjutó frakció, az már egy jól elkülönülő, kis foltba koncentrálódik, azon belül nagy áramsűrűséggel. Végül a stabil, nagy hatásfokú tereléses átvitel kialakulásakor az átvezetett protonok a kis nyalábfoltba koncentrálódnak. Ez a frakció a bejövő intenzitástól függően a minta döntési szögével megegyező irányban, vagy egy annál nagyobb szögben lép ki a kapillárisból. Ha az átvitel nem éri el a 100%-ot, akkor továbbra is jelen vannak a szóródással átjutó részecskék, amelyek továbbra is egy szélesebb szög-tartományt fognak át, 2-3 nagyságrenddel kisebb intenzitás-sűrűséggel.

A dolgozatban bemutatott munkával elsőként sikerült kimutatni, hogy a MeV energiatartományban is lehetséges az ionok szigetelő kapillárisokon keresztül történő iontereléses (tisztán elektrosztatikus) átvitele. A szimulációkkal sikerült értelmezni a folyamatot irányító mechanizmusokat is. Az eredmények új típusú technikai alkalmazások megjelenését is elősegíthetik (pl. passzív elektrosztatikus kvadрупól lencse), vagy a már kidolgozott alkalmazások hátrányainak (pl. a szóródás miatti energiaveszteség) kiküszöbölésével alternatívát nyújthatnak azoknak.

7. Summary

During my PhD work I investigated the guiding of swift, microfocused proton beam through a single, cylindrical insulator macrocapillary using experimental and computer simulation methods. The beam energy was 1 MeV, the beam size was a few micrometers (depending on the incident beam intensity) and the beam axis formed a 1° incident angle with the capillary axis. The divergence of the beam was 0.29° in the Z – X (sample rotation) plane and 0.09° in the Z – Y plane. The capillary sample was made of poly(tetrafluoroethylene) (PTFE, teflon), its length was $l \approx 45 \text{ mm}$, its inner diameter was $d \approx 800 \mu\text{m}$ and its wall thickness was $s \approx 400 \mu\text{m}$. The system parameters (sample dimensions, beam divergence, incident angle, center-injection), resulted in a geometrically non-transparent arrangement, i.e. the incident beam hit the inner capillary wall and started to accumulate electric charges on it. The electric field of these charges deflected the incident beam to the direction of the capillary exit, resulting in guided transmission.

During the experimental work, an appropriate experimental setup had to be constructed first, that was appropriate for investigating those properties of the beam that can identify the existence of ion guiding. For this we used two experimental arrangements. The first one was used to measure the intensity and energy spectrum of the transmitted beam, while the second one was able to investigate the emission angle, the charge state and indirectly the intensity of the transmitted particles. We define the transmitted beam intensity in the percentage of the incident intensity. In order to test the reproducibility of the experiments, we had to come up with a precise sample positioning technique. For this purpose we used optical microscopy and Rutherford backscattering spectrometry. During the experiments we continuously monitored the incident beam current, for which we used a beam chopper. The incident beam intensity was varied between a few pA and 170 pA. Using the first experimental arrangement, we measured the transmitted beam intensity by a Faraday-cup. The energy spectrum of the transmitted particles was measured by a surface barrier (SB) or a PIN type particle detector. With the second arrangement we

visualized the deflection of the transmitted beam using a fluorescent screen, which was recorded by a digital camera with a CCD sensor. From the magnitude of the deflection we determined the emission angle. Also with the fluorescent screen, from the deflection caused by an electrostatic deflector we determined the charge state of the transmitted beam. From the brightness of the screen we could indirectly estimate the transmitted intensity.

In order to explain the experimental observations and to reveal new phenomena, I have developed a computer simulation code that employs Monte-Carlo and molecular dynamics (MD) methods, for which I used the C programming language. The development included two phases. First, I modeled the reality with a 2 dimensional section (this was the sample rotation plane). The lateral distribution of the incoming beam was a Gaussian-distributed random number with full width at half maximum of $1 \mu\text{m}$ independently of the incident intensity, while the direction of the beam was defined as a uniformly distributed random number in the interval $1 \pm 0.29^\circ$. The incoming beam intensity was varied between $0.5 - 500 \text{ pA}$. The propagation of the projectiles was described by solving Newton's equations of motion using the velocity-Verlet algorithm. The energy loss of protons that hit the capillary wall was modeled using the Bethe-Bloch formula, while the change of their direction was given using the small angle multiple elastic (Rutherford) scattering formula. The relaxation of the charges that had been deposited on the wall was assumed to be a diffusion current, which I described by the diffusion equation, using a finite difference approximation. In the second phase of the development I have extended the simulation to 3 dimensions, and I applied several improvements. The lateral- and angular distribution of the incoming beam was given by raysets generated by the WinTRAX ion optics software. The energy loss and scattering processes in the bulk material was modeled by calculations made by the SRIM software. The concentration and potential gradient induced relaxation of the charges on the capillary wall was described by the Nernst-Planck equation, using a finite difference approximation.

In the experiments, the efficiency of the transmission started at $\sim 20\%$ and was not dependent on the incident beam intensity. In the process, the efficiency immediately started to increase and it continued growing gradually, until a stable, high efficiency transmission was formed between $90 - 100\%$. The

simulation showed similar behavior. The initial value of transmission was around 15%, which gradually increased up to saturation level of above 90%.

During the experiments I observed that the time needed for a stable transmission to be formed was approximately inversely proportional to the incident beam intensity, i.e. higher intensity resulted in an earlier formation of the stable guided transmission. From the reciprocal function fit of the measured data I determined that $q_{inserted}=38.75\pm 0.68$ nC inserted charge is required for the stable transmission. Considering the increasing transmission, I estimated that the charge deposited on the wall must be $q_{deposited}=22.07\pm 8.94$ nC . The simulation described well the experimentally observed relation: the time required until the formation of the stable guided transmission is inversely proportional to the injected charge in a wide incident intensity range. In addition to this, the simulation revealed that the efficiency of the transmission is incident intensity dependent. If the incoming current is sufficiently small, the transmission stabilizes at lower efficiency. Using 0.5 pA intensity, the transmission saturated at 50%. On the other hand, if the incoming current was sufficiently high, 100% efficiency transmission was formed. This was already observable at 100 pA. In addition to this, I also observed that 500 pA incident intensity turned out to be too high, and due to the over-charge of the inner wall the beam was steered to the opposite capillary wall. This partial blocking effect appeared in the fall of the transmission efficiency.

In the experiments I determined the mean emission angle of the transmitted beam first. Using few pA incident intensity the emission angle was equal to the target rotation angle, i.e. the beam came out from the capillary parallel with its axis. However, the 2D simulation showed that at higher incident intensities the deflection increases with increasing transmission efficiency, i.e. the mean emission angle dynamically changes. In case of sufficiently high incoming current the beam might be deflected to the opposite wall. Based on this observation, I repeated the experiment using a higher incident beam intensity. The measurement confirmed the dynamic behavior predicted by the simulation. Using 110 pA incident intensity, the mean emission angle showed gradual increase, and when the transmission stabilized, it saturated at 1.4°.

The experiments proved that in case of stabilized transmission the beam did not change its charge state (protons did not capture electrons from the sample atoms), because the applied electrostatic field deflected the whole beam.

We examined the temporal evolution of the energy spectrum of the transmitted beam. At the beginning of the transmission, the entire transmitted beam (which was 20% fraction of the incoming beam) suffered energy loss, which we attributed to the energy loss suffered during elastic forward scatterings. With increasing transmission, the E_0 peak according to the incident beam energy appeared in the spectrum, whose contribution became more and more significant with rising transmission. In the case of the stable transmission, the whole beam transmitted through the capillary without energy loss, with energy spread corresponding to the energy resolution of the particle detector. We attributed this to the formation of the guided transmission. The simulation reproduced our observation that the energy spectra show temporal evolution. With the analysis of the particle trajectories I concluded that the reason for this is beam divergence. Projectiles arriving in smaller incident angle than the nominal value can be guided through the capillary earlier, since lower potential is enough for the electrostatic transmission because of their smaller transversal velocity component. If the formed electric potential is high enough for projectiles arriving in the largest incident angle to lose their transversal velocity component, 100% efficiency transmission can form. In addition to this, the simulation revealed that although the energy spread of the outgoing beam equals to that of the incoming beam, the kinetic energy of the projectiles dynamically changes along their trajectory according to the potential field inside the capillary.

In the experiments I determined that the beam divergence changes during the transmission process. In the case of the stabilized transmission, the X direction divergence decreases to approximately one third to that of the incident beam, while the Y direction divergence doubled. With this observation I identified a quadrupole-like focusing effect. In addition to this, the 3 dimensional simulation showed that the emission angle of scattered and guided particles differs from each other. In the beginning of the transmission, when it is due to forward scatterings, the transmitted beam covers a wide angular range with low intensity density. The emission angle of the transmitted particles

ranges from $1 - 3^\circ$ in the X and $-1 - 1^\circ$ in the Y direction with respect to the incident beam direction. Later, when the guided fraction appears, it is concentrated into a small, well-separated spot, in which the current density is higher. Finally, when the high efficiency, stable guided transmission is formed, the transmitted protons are concentrated into the small beam spot. This fraction comes out of the capillary either equally to the sample tilting angle or in a larger angle, depending on the incoming intensity. If the transmission does not reach 100%, scattered particles are still present, which are still distributed in a broad angular range, but with 2 – 3 orders of magnitude lower intensity density.

The work presented in this thesis is the first proof that guided (purely electrostatic) transmission of MeV energy ions is possible through insulator capillaries. With the simulations the governing mechanisms are successfully interpreted. The results might help the invention of new types of technical applications (e.g. passive electrostatic quadrupole lens), or with the elimination of drawbacks (e.g. energy loss due to scattering) of existing applications they might provide an alternative to them.

8. Publikációk

Az értekezés alapjául szolgáló impakt faktoros közlemények

- [A1] **G.U.L. Nagy**, I. Rajta, R.J. Berezky, K. Tókési, *Incident beam intensity dependence of the charge-up process of the guiding of 1 MeV proton microbeam through a Teflon microcapillary*, Eur. Phys. J. D, **69**: 102 (2015).
<https://doi.org/10.1140/epjd/e2015-50718-3>
- [A2] I. Rajta, **G.U.L. Nagy**, R.J. Berezky, K. Tókési, *Interaction of proton microbeam with the inner surface of a polytetrafluoroethylene macrocapillary*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, **354** (2015) 328-331.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2014.12.042>
- [A3] **G.U.L. Nagy**, S.Z. Szilasi, I. Rajta, K. Tókési, *Simulation of the time evolution of 1 MeV proton microbeam transmission through an insulating macrocapillary*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, **406** (2017) 417-420.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2017.02.025>
- [A4] **G.U.L. Nagy**, E. Giglio, I. Rajta, K. Tókési, *Transmission dynamics of 1 MeV H^+ microbeam guided through an insulating macrocapillary*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, In Press, Corrected Proof.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2018.11.045>

Beküldés vagy előkészítés alatt lévő publikációk

- [A5] **G.U.L. Nagy**, I. Rajta, R.J. Berezky, K. Tókési, *Temporal evolution of the energy distribution of protons guided through an insulating macrocapillary*, Beküldve a Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B folyóiratba.
- [A6] **G.U.L. Nagy**, I. Rajta, K. Tókési, *Spatial distribution of protons guided through an insulating macrocapillary*, Publikáció előkészítés alatt.

Az értekezés alapjául szolgáló egyéb közlemények

- [E1] **G.U.L. Nagy**, I. Rajta, R.J. Berezky, K. Tókési, *Experimental setup for guiding of 1 MeV proton microbeam*, AIP Conf. Proc. **1525** (2013) 40-

42.

<http://dx.doi.org/10.1063/1.4802286>

- [E2] **G.U.L. Nagy**, I. Rajta, K. Tókési, *2D simulation of 1 MeV proton microbeam transmission through an insulating macrocapillary*, In: Contributed Papers & Abstracts of Invited Lectures, Topical Invited Lectures, Progress Reports and Workshop Lectures, 28th Summer School and International Symposium on the Physics of Ionized Gases (SPIG 2016) 29 August - 2 September 2016, Belgrade, Serbia. Eds.: Dragana Marić, Aleksandar Milosavljević, Bratislav Obradović and Goran Poparić. (2016) 172-173.

<http://www.spig2016.ipb.ac.rs/spig2016-book-online.pdf>

Az értekezéshez nem kapcsolódó impakt faktoros közlemények

- [N1] I. Bányász, I. Rajta, **G.U.L. Nagy**, Z. Zolnai, V. Havranek, S. Pelli, M. Veres, S. Berneschi, G. Nunzi-Conti, G.C. Righini, *Fabrication of optical channel waveguides in crystals and glasses using macro- and micro ion beams*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, **331** (2014) 157-162.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2013.12.042>
- [N2] W. Kuznik, I. Fuks-Janczarek, A. Wojciechowski, I.V. Kityk, V. Kiisk, A. Majchrowski, L.R. Jaroszewicz, M.G. Brik, **G.U.L. Nagy**, *Absorption, fluorescence and second harmonic generation in Cr³⁺-doped BiB₃O₆ glasses*, Spectrochim. Acta A, **145** (2015) 325-328.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.saa.2015.03.041>
- [N3] **G.U.L. Nagy**, I. Rajta, R.J. Berezky, K. Tókési, *Energy distribution of proton microbeam transmitted through two flat plates*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, **354** (2015) 317-320.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2015.01.020>
- [N4] I. Rajta, R. Huszánk, A.T.T. Szabó, **G.U.L. Nagy**, Sz. Szilasi, P. Fürjes, E. Holczer, Z. Fekete, G. Járvas, M. Szigeti, L. Hajba, J. Bodnár, A. Guttman, *Tilted pillar array fabrication by the combination of proton beam writing and soft lithography for microfluidic cell capture: Part 1 Design and feasibility*, Electrophoresis **37** (2016) 498-503.
<https://doi.org/10.1002/elps.201500254>

- [N5] A. Ponomarov, I. Rajta, **Gy. Nagy**, O.V. Romanenko, *Single-stage quintuplet for upgrading triplet based lens system: Simulation for Atomki microprobe*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, **404** (2017) 34-40.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2017.01.057>
- [N6] **G.U.L. Nagy**, V. Lavrentiev, I. Bányász, S.Z. Szilasi, V. Havranek, V. Vosecek, R. Huszánk, I. Rajta, *Compaction of polydimethylsiloxane due to nitrogen ion irradiation and its application for creating microlens arrays*, Thin Solid Films, **636** (2017) 634-638.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2017.07.015>
- [N7] E. Giglio, S. Guillous, A. Cassimi, H.Q. Zhang, **G.U.L. Nagy**, K. Tókési, *Evolution of the electric potential of an insulator under charged particle impact*, Phys. Rev. A **95** (2017) 030702(R).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.030702>
- [N8] T. Nichol, **Gy. Nagy**, R. Huszánk, D. Tenne, M.N. Kozicki, H.J. Barnaby, I. Rajta, M. Mitkova, *Proton Beam Effects on Ge–Se/Ag Thin Films*, Phys. Status Solidi B, **255** (2018) 1700453.
<https://doi.org/10.1002/pssb.201700453>
- [N9] I. Rajta, **G.U.L. Nagy**, I. Vajda, S.Z. Szilasi, G.W. Grime, F. Watt, *First resolution test results of the Atomki nuclear nanoprobe*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **449** (2019) 94-98.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2019.03.056>
- [N10] O. Romanenko, M. Cutroneo, V. Havranek, A. Mackova, M. Davidkova, A.G. Ponomarev, **Gy. Nagy**, J. Stammers, *Performance and application of heavy ion nuclear microbeam facility at the Nuclear Physics Institute in Řež, Czech Republic*, Rev. Sci. Instr. **90** (2019) 013701.
<https://doi.org/10.1063/1.5070121>
- [N11] **G.U.L. Nagy**, R. Kerékgyártó, A. Csík, L. Daróczi, I. Rajta, *Morphological changes of poly(tetrafluoroethylene) surface due to low current density proton irradiation*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **449** (2019) 71-74.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2019.04.050>

9. Köszönetnyilvánítás

Először is szeretném megköszönni mindenkinek a segítségét, aki bármilyen formában hozzájárult a munka és a dolgozat megszületéséhez. Külön köszönettel tartozom témavezetőmnek, Dr. Rajta Istvánnak, hogy munkámat segítette és támogatta, mindvégig hasznos ötletekkel és tanácsokkal látott el. Ezen kívül köszönettel tartozom Dr. Tókési Károlynak, hogy a kutatási témájába bekapcsolódhattam, továbbá, hogy végig támogatta a munkámat, és hasznos tanácsokkal látott el.

Köszönöm még a hasznos beszélgetéseket és tanácsokat az Ionnyaláb-fizikai Laboratórium munkatársainak, valamint minden kollégámnak. Köszönöm a Van de Graaff gyorsító volt és jelenlegi operátorainak, hogy biztosították számomra a gyorsító működését, illetve, hogy technikai tudásukkal is hozzájárultak a kísérletek megvalósításához.

Végül pedig köszönöm a családom és a barátaim segítségét, támogatását.

10. Irodalomjegyzék

- [1] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, *The stopping and range of ions in solids*, Pergamon Press, Inc., (1985). ISBN: 0-08-021603-X
- [2] W. H. Bragg, R. Kleeman, *On the α particles of radium, and their loss of range in passing through various atoms and molecules*, The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **10** 57 (1905) 318-340.
<https://doi.org/10.1080/14786440509463378>
- [3] M.B.H. Breese, D.N. Jamieson, P.J.C. King, *Materials analysis using a nuclear microprobe*, John Wiley & Sons, Inc., (1996). ISBN: 0-471-10608-9
- [4] E.B. Podgorsak, *Radiation Physics for Medical Physicists*, Springer, (2006). ISBN: 978-3-540-25041-8
- [5] Angeli István, *Részecske Gyorsítók I.*, PhD kurzus (Kézirat), Debreceni Egyetem, TTK, Kísérleti Fizikai Tanszék (2014).
- [6] C. Jeynes, M.J. Bailey, N.J. Bright, M.E. Christopher, G.W. Grime, B.N. Jones, V.V. Palitsin, R.P. Webb, “*Total IBA*” – *Where are we?*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **271** (2012) 107-118.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2011.09.020>
- [7] Szilasi Sz.Z., *Protonnyaláb okozta fizikai és kémiai változások vizsgálata polimerekben és alkalmazásaik a protonnyalábos mikromegmunkálásban*, Egyetemi doktori (PhD) értekezés, Debreceni Egyetem Természettudományi Doktori Tanács Fizikai Tudományok Doktori Iskolája, (2012).
<https://dea.lib.unideb.hu/dea/handle/2437/130522>
- [8] N. Stolterfoht, J.-H. Bremer, V. Hoffmann, R. Hellhammer, D. Fink, A. Petrov, B. Sulik, *Transmission of 3 keV Ne⁷⁺ ions through nanocapillaries etched in polymer foils: evidence for capillary guiding*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 133201.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.88.133201>
- [9] C. Lemell, J. Burgdörfer, F. Aumayr, *Interaction of charged particles with insulating capillary targets – The guiding effect*, Prog. Surf. Sci. **88** (2013) 237-278.
<https://doi.org/10.1016/j.progsurf.2013.06.001>

- [10] N. Stolterfoht, Y. Yamazaki, *Guiding of charged particles through capillaries in insulating materials*, Physics Reports **629** (2016) 1-107.
<https://doi.org/10.1016/j.physrep.2016.02.008>
- [11] T.M. Kojima, *Ion guiding in macro-size insulating capillaries: straight, tapered, and curved shapes*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **51** (2018) 042001 (21pp).
<https://doi.org/10.1088/1361-6455/aa9eaf>
- [12] R.J. Bereczky, *Transmission of charged particles through a single glass microcapillary*, Egyetemi doktori (PhD) értekezés, Debreceni Egyetem Természettudományi Doktori Tanács Fizikai Tudományok Doktori Iskolája, (2012).
<https://dea.lib.unideb.hu/dea/handle/2437/131869>
- [13] Herczku P., *Ionbombázással keltett és iondetektálással vizsgált folyamatok: a többszörös ionizációtól az önszervező ionterelési mechanizmusig*, Egyetemi doktori (PhD) értekezés, Debreceni Egyetem Természettudományi és Informatikai Doktori Tanács Fizikai Tudományok Doktori Iskolája, (2018).
<https://dea.lib.unideb.hu/dea/handle/2437/262988>
- [14] K. Schiessl, W. Palfinger, K. Tókési, H. Nowotny, C. Lemell, J. Burgdörfer, *Simulation of guiding of multiply charged projectiles through insulating capillaries*, Phys. Rev. A **72** (2005) 062902.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.72.062902>
- [15] Z. Juhász, B. Sulik, R. Rácz, S. Biri, R.J. Bereczky, K. Tókési, Á. Kövér, J. Pálinkás, N. Stolterfoht, *Ion guiding accompanied by formation of neutrals in polyethylene terephthalate polymer nanocapillaries: Further insight into a self-organizing process*, Phys. Rev. A **82** (2010) 062903.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.82.062903>
- [16] Z. Juhász, B. Sulik, S. Biri, I. Iván, K. Tókési, É. Fekete, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, Gy. Víkor, E. Takács, J. Pálinkás, *Ion guiding in alumina capillaries: MCP images of the transmitted ions*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **267** (2009) 321-325.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2008.10.017>
- [17] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z.D. Pešić, V. Hoffmann, J. Bundesmann, A. Petrov, D. Fink, B. Sulik, *Guiding of slow Ne⁷⁺ ions through nanocapillaries in a PET polymer: dependence on the capillary diameter*, Surf. Coat. Technol. **196** (2005) 389-393.
<https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2004.08.156>

- [18] C.L. Zhou, M. Simon, T. Ikeda, S. Guillous, W. Iskandar, A. Méry, J. Rangama, H. Lebius, A. Benyagoub, C. Grygiel, A. Müller, M. Döbeli, J. A. Tanis, A. Cassimi, *Transmission of slow highly charged ions through glass capillaries: Role of the capillary shape*, Phys. Rev. A **88** (2013) 050901(R).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.88.050901>
- [19] R. Hellhammer, Z.D. Pešić, P. Sobocinski, D. Fink, J. Bundesmann, N. Stolterfoht, *Guided transmission of highly charged ions through nanocapillaries in PET: Study of the energy dependence*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **233** (2005) 213-217.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2005.03.108>
- [20] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, J. Bundesmann, D. Fink, Y. Kanai, M. Hoshino, T. Kambara, T. Ikeda, Y. Yamazaki, *Guiding of slow Ne⁷⁺ ions through nanocapillaries in insulating polyethylene terephthalate: Incident current dependence*, Phys. Rev. A **76** (2007) 022712.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.76.022712>
- [21] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z.D. Pešić, V. Hoffmann, J. Bundesmann, A. Petrov, D. Fink, B. Sulik, *Guided transmission of Ne⁷⁺ ions through nanocapillaries in PET: dependence on the tilt angle*, Vacuum **73** (2004) 31-37.
<https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2003.12.024>
- [22] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, B. Sulik, Z. Juhász, V. Bayer, C. Trautmann, E. Bodewits, R. Hoekstra, *Evidence of blocking effects on 3-keV Ne⁷⁺ ions guided through nanocapillaries in polycarbonate*, Phys. Rev. A **83** (2011) 062901.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.83.062901>
- [23] M.B. Sahana, P. Skog, Gy. Viktor, R.T. Rajendra Kumar, R. Schuch, *Guiding of highly charged ions by highly ordered SiO₂ nanocapillaries*, Phys. Rev. A **73** (2006) 040901(R).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.73.040901>
- [24] S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, L. Piraux, Z. Juhász, S. Biri, É. Fekete, I. Iván, F. Gáll, B. Sulik, Gy. Víkor, J. Pálincás, N. Stolterfoht, *Guided transmission of slow Ne⁶⁺ ions through the nanochannels of highly ordered anodic alumina*, Nanotechnology **17** (2006) 3915-3919.
<https://doi.org/10.1088/0957-4484/17/15/050>
- [25] T.M. Kojima, T. Ikeda, Y. Kanai, Y. Yamazaki, V.A. Esaulov, *Ion beam guiding with straight and curved Teflon tubes*, J. Phys. D: Appl. Phys. **44**

- (2011) 355201.
<https://doi.org/10.1088/0022-3727/44/35/355201>
- [26] T.M. Kojima, T. Ikeda, Y. Kanai, Y. Yamazaki, *Ion guiding in curved glass capillaries*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **354** (2015) 16-19.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2014.11.031>
- [27] R.J. Berezky, G. Kowarik, F. Aumayr, K. Tókési, *Transmission of 4.5 keV Ar⁹⁺ ions through a single glass macro-capillary*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **267** (2009) 317-320.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2008.10.080>
- [28] G. Kowarik, R.J. Berezky, F. Aumayr, K. Tókési, *Production of a microbeam of slow highly charged ions with a single microscopic glass capillary*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **267** (2009) 2277-2279.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2009.03.086>
- [29] R.J. Berezky, G. Kowarik, K. Tókési, F. Aumayr, *Sample holder for studying temperature dependent particle guiding*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **279** (2012) 182-185.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2011.10.064>
- [30] E. Gruber, G. Kowarik, F. Ladinig, J.P. Waclawek, D. Schrempf, F. Aumayr, R.J. Berezky, K. Tókési, P. Gunacker, T. Schweigler, C. Lemell, J. Burgdörfer, *Temperature control of ion guiding through insulating capillaries*, Phys. Rev. A **86** (2012) 062901.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.86.062901>
- [31] N. Stolterfoht, E. Gruber, P. Allinger, S. Wampl, Y. Wang, M.J. Simon, F. Aumayr, *Experiments and simulations of 4.5-keV Ar⁷⁺ -ion guiding through a conical glass macrocapillary*, Phys. Rev. A **91** (2015) 032705.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.91.032705>
- [32] E. Giglio, S. Guillous, A. Cassimi, *Ion-beam focusing by self-organized axis-symmetric potentials in insulating capillaries*, Phys. Rev. A **98** (2018) 052704.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.98.052704>
- [33] T. Nebiki, T. Yamamoto, T. Narusawa, M.B.H. Breese, E.J. Teo, F. Watt, *Focusing of MeV ion beams by means of tapered glass capillary optics*, J. Vac. Sci. Technol. A **21** (2003) 1671-1674.
<https://doi.org/10.1116/1.1597889>
- [34] T. Schweigler, C. Lemell, J. Burgdörfer, *Simulation of transmission of slow highly charged ions through insulating tapered macro-capillaries*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **269** (2011) 1253-1256.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2010.11.037>

- [35] T. Ikeda, Y. Kanai, T.M. Kojima, Y. Iwai, T. Kambara, Y. Yamazaki, M. Hoshino, T. Nebiki, T. Narusawa, *Production of a microbeam of slow highly charged ions with a tapered glass capillary*, Appl. Phys. Lett. **89** (2006) 163502.
<https://www.doi.org/10.1063/1.2362642>
- [36] T. Ikeda, Y. Kanai, Y. Iwai, T.M. Kojima, K. Maeshima, W. Meissl, T. Kobayashi, T. Nebiki, S. Miyamoto, G.P. Pokhil, T. Narusawa, N. Imamoto, Y. Yamazaki, *Glass capillary optics for producing nanometer sized beams and its applications*, Surf. Coat. Technol. **206** (2011) 859-863.
<https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2011.03.098>
- [37] M. Kreller, G. Zschornack, U. Kentsch, *Guiding of argon ions through a tapered glass capillary*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **269** (2011) 1032-1035.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2010.12.060>
- [38] T. Nebiki, M.H. Kabir, T. Narusawa, *In-air PIXE analysis by means of glass capillary optics*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **249** (2006) 226-229.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2006.04.003>
- [39] E. Giglio, R.D. DuBois, A. Cassimi, K. Tőkési, *Low energy ion transmission through a conical insulating capillary with macroscopic dimensions*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. **354** (2015) 82-85.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2014.11.056>
- [40] Z. Juhász, S.T.S. Kovács, P. Herczku, R. Rácz, S. Biri, I. Rajta, G.A.B. Gál, S.Z. Szilasi, J. Pálinkás, B. Sulik, *Guided transmission of 3 keV Ar⁷⁺ ions through dense polycarbonate nanocapillary arrays: Blocking effect and time dependence of the transmitted neutrals*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **279** (2012) 177-181.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2011.10.051>
- [41] T. Ikeda, T.M. Kojima, Y. Natsume, J. Kimura, T. Abe, *Stable transmission of slow highly charged ions through tapered glass capillary with active discharging method for sub-micron sized beams*, Appl. Phys. Lett. **109** (2016) 133501.
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4962727>
- [42] E. Giglio, S. Guillous, A. Cassimi, H.Q. Zhang, G.U.L. Nagy, K. Tőkési, *Evolution of the electric potential of an insulator under charged particle impact*, Phys. Rev. A **95** (2017) 030702(R).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.030702>

- [43] N. Stolterfoht, *Simulation and analysis of ion guiding through a nanocapillary in insulating polymers*, Phys. Rev. A **87** (2013) 012902.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.87.012902>
- [44] N. Stolterfoht, *Experiments and simulations of ion guiding through nanocapillaries in insulating polymers*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **317** (2013) 96-100.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2013.01.051>
- [45] N. Stolterfoht, *Simulations of ion guiding through a straight macrocapillary: Interpretation of an experiment and comparison with nanocapillaries*, Phys. Rev. A **89** (2014) 062706.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.89.062706>
- [46] N. Stolterfoht, *Comparison of ion guiding through nanocapillaries and macrocapillaries in insulating materials*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **354** (2015) 51-55.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2014.11.026>
- [47] P. Skog, H.Q. Zhang, R. Schuch, *Evidence of sequentially formed charge patches guiding ions through nanocapillaries*, Phys. Rev. Lett. **101** (2008) 223202.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.223202>
- [48] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, D. Fink, B. Sulik, Z. Juhász, E. Bodewits, H.M. Dang, R. Hoekstra, *Dynamic properties of ion guiding through nanocapillaries in an insulating polymer*, Phys. Rev. A **79** (2009) 022901.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevA.79.022901>
- [49] J. Hasegawa, S. Jaiyen, C. Polee, N. Chankow, Y. Oguri, *Transport mechanism of MeV protons in tapered glass capillaries*, J. Appl. Phys. **110** (2011) 044913.
<http://dx.doi.org/10.1063/1.3624617>
- [50] M.J. Simon, C.L. Zhou, M. Döbeli, A. Cassimi, I. Monnet, A. Méry, C. Grygiel, S. Guillous, T. Madi, A. Benyagoub, H. Lebius, A.M. Müller, H. Shiromaru, H.-A. Synal, *Measurements and 3D Monte Carlo simulation of MeV ion transmission through conical glass capillaries*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **330** (2014) 11-17.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2014.03.016>
- [51] G.Y. Wang, J.X. Shao, Q. Song, D. Mo, A.X. Yang, X. Ma, W. Zhou, Y. Cui, Y. Li, Z.L. Liu, X.M. Chen, *Transmission of hundred-keV protons through Insulating nanocapillaries: Charge-patch-assisted specular*

- reflections, *Sci. Rep.* **5** (2015) 15169.
<https://doi.org/10.1038/srep15169>
- [52] J. Hasegawa, S. Jaiyen, C. Polee, Y. Oguri, *Development of a micro-PIXE system using tapered glass capillary optics*, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **269** (2011) 3087-3090.
<https://www.doi.org/10.1016/j.nimb.2011.04.073>
- [53] M.J. Simon, M. Döbeli, A.M. Müller, H.-A. Synal, *In-air STIM with a capillary microprobe*, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **273** (2012) 237-240.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2011.07.084>
- [54] M. Kato, W. Meissl, K. Umezawa, T. Ikeda, Y. Yamazaki, *Real-time observation of Escherichia coli cells under irradiation with a 2-MeV H⁺ microbeam*, *Appl. Phys. Lett.* **100** (2012) 193702.
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4714911>
- [55] Y. Iwai, T. Ikeda, T.M. Kojima, Y. Yamazaki, K. Maeshima, N. Imamoto, T. Kobayashi, T. Nebiki, T. Narusawa, G.P. Pokhil, *Ion irradiation in liquid of μm^3 region for cell surgery*, *Appl. Phys. Lett.* **92** (2008) 023509.
<https://doi.org/10.1063/1.2834695>
- [56] V. Mäckel, N. Puttaraksa, T. Kobayashi, Y. Yamazaki, *Single proton counting at the RIKEN cell irradiation facility*, *Rev. Sci. Instr.* **86** (2015) 085103.
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4927718>
- [57] A.R. Milosavljević, Gy. Víkor, Z.D. Pešić, P. Kolarž, D. Šević, B.P. Marinković, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, L. Piraux, *Guiding of low-energy electrons by highly ordered Al₂O₃ nanocapillaries*, *Phys. Rev. A* **75** (2007) 030901(R).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.75.030901>
- [58] K. Schiessl, K. Tókési, B. Solleder, C. Lemell, J. Burgdörfer, *Electron guiding through insulating nanocapillaries*, *Phys. Rev. Lett.* **102** (2009) 163201.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.163201>
- [59] G. Sun, X. Chen, J. Wang, Y. Chen, J. Xu, C. Zhou, J. Shao, Y. Cui, B. Ding, Y. Yin, X. Wang, F. Lou, X. Lv, X. Qiu, J. Jia, L. Chen, F. Xi, Z. Chen, L. Li, Z. Liu, *Interaction of 18-keV O⁻ ions with Al₂O₃ nanocapillaries*, *Phys. Rev. A* **79** (2009) 052902.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.79.052902>

- [60] R.D. DuBois, K. Tókési, *Can positrons be guided by insulating capillaries?*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **279** (2012) 186-189.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2011.10.041>
- [61] H. Tsuchida, T. Majima, S. Tomita, K. Sasa, K. Narumi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Yamada, K. Hirata, H. Shibata, A. Itoh, *Transmission properties of C60 ions through micro- and nano-capillaries*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **315** (2013) 336-340.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2013.04.094>
- [62] T.M. Kojima, D. Tomono, T. Ikeda, K. Ishida, Y. Iwai, M. Iwasaki, Y. Matsuda, T. Matsuzaki, Y. Yamazaki, *Density enhancement of muon beams with tapered glass tubes*, J. Phys. Soc. Japan **76** (2007) 093501.
<https://doi.org/10.1143/jpsj.76.093501>
- [63] Wei-Guo Jin, K. Katoh, T. Minowa, T. Ikeda, *Light microbeams by tapered glass capillaries for biological irradiation*, J. Comp. Comm. **1** (2013) 5-8.
<http://dx.doi.org/10.4236/jcc.2013.17002>
- [64] <http://w3.atomki.hu/muszerek/muszerek.html#vdg5>
- [65] I. Rajta, I. Vajda, Gy. Gyürky, L. Csedreki, Á.Z. Kiss, S. Biri, H.A.P. van Oosterhout, N.C. Podaru, D.J.W. Mous, *Accelerator characterization of the new ion beam facility at MTA Atomki in Debrecen, Hungary*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **880** (2018) 125-130.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.10.073>
- [66] J.A. Cookson, A.T.G. Ferguson, F.D. Pilling, *Proton microbeams, their production and use*, J. Radioanal. Chem. **12** (1972) 39-52.
<https://doi.org/10.1007/BF02520973>
- [67] I. Rajta, *A pásztázó proton mikroszonda telepítése és tudományos alkalmazásai*, PhD értekezés, Magyar Tudományos Akadémia Atommagkutató Intézete, Debrecen, (1997).
<https://dea.lib.unideb.hu/dea/handle/2437/89216>
- [68] S.H. Sie, C.G. Ryan, *An electrostatic "Russian" quadruplet microprobe lens*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **15** (1986) 664-668.
[https://doi.org/10.1016/0168-583X\(86\)90389-7](https://doi.org/10.1016/0168-583X(86)90389-7)
- [69] H.W. Lefevre, R.C. Connolly, G. Sieger, J.C. Overley, *Scanning MeV-ion microprobe for light and heavy ions*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **218** (1983) 39-42.
[https://doi.org/10.1016/0167-5087\(83\)90951-1](https://doi.org/10.1016/0167-5087(83)90951-1)

- [70] C.J. Maggiore, *The Los Alamos nuclear microprobe with a superconducting solenoid final lens*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **191** (1981) 199-203.
[https://doi.org/10.1016/0029-554X\(81\)91005-3](https://doi.org/10.1016/0029-554X(81)91005-3)
- [71] D.N. Jamieson, G.W. Grime, F. Watt, *The new Oxford scanning proton microprobe analytical facility*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **40-41** (1989) 669-674.
[https://doi.org/10.1016/0168-583X\(89\)91072-0](https://doi.org/10.1016/0168-583X(89)91072-0)
- [72] J. Simičič, P. Pelicon, M. Budnar, Ž. Šmit, *The performance of the Ljubljana ion microprobe*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. **190** (2002) 283-286.
[https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(01\)01258-7](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(01)01258-7)
- [73] F. Watt, J.A. van Kan, I. Rajta, A.A. Bettiol, T.F. Choo, M.B.H. Breese, T. Osipowicz, *The National University of Singapore high energy ion nano-probe facility: Performance tests*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. **210** (2003) 14-20.
[https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(03\)01003-6](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(03)01003-6)
- [74] A. Simon, C. Jeynes, R.P. Webb, R. Finnis, Z. Tabatabaian, P.J. Sellin, M.B.H. Breese, D.F. Fellows, R. van den Broeke, R.M. Gwilliam, *The new Surrey ion beam analysis facility*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. **219-220** (2004) 405-409.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2004.01.091>
- [75] O. Romanenko, V. Havranek, A. Mackova, M. Davidkova, M. Cutroneo, A.G. Ponomarev, Gy. Nagy, J. Stammers, *Performance and application of heavy ion nuclear microbeam facility at the Nuclear Physics Institute in Řež, Czech Republic*, Rev. Sci. Instr. **90** (2019) 013701.
<https://doi.org/10.1063/1.5070121>
- [76] S. Incerti, Q. Zhang, F. Andersson, Ph. Moretto, G.W. Grime, M.J. Merchant, D.T. Nguyen, C. Habchi, T. Pouthier, H. Sez nec, *Monte Carlo simulation of the CENBG microbeam and nanobeam lines with the Geant4 toolkit*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **260 1** (2007) 20-27.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2007.01.274>
- [77] M.J.J. van den Putte, J.F.J. van den Brand, D.N. Jamieson, B. Rout, R. Szymanski, *The Amsterdam quintuplet nuclear microprobe*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. **210** (2003) 21-26.
[https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(03\)01006-1](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(03)01006-1)
- [78] K.I. Melnik, D.V. Magilin, A.G. Ponomarev, *Experimental results of microprobe focusing by quadruplet with four independent lens power*

- supplies*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. **306** (2013) 17-20.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2013.01.037>
- [79] I. Rajta, I. Borbély-Kiss, Gy. Mórík, L. Bartha, E. Koltay, Á.Z. Kiss, *The new ATOMKI scanning proton microprobe*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. **109-110** (1996) 148-153.
[https://doi.org/10.1016/0168-583X\(95\)00897-7](https://doi.org/10.1016/0168-583X(95)00897-7)
- [80] A. Ponomarov, I. Rajta, Gy. Nagy, O.V. Romanenko, *Single-stage quintuplet for upgrading triplet based lens system: Simulation for Atomki microprobe*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **404** (2017) 34-40.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2017.01.057>
- [81] F. Watt, X. Chen, A.B. de Vera, C.N.B. Udalagama, M. Ren, J.A. van Kan, A.A. Bettiol, *The Singapore high resolution single cell imaging facility*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **269** (2011) 2168-2174.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2011.02.028>
- [82] I. Rajta, G.U.L. Nagy, I. Vajda, S.Z. Szilasi, G.W. Grime, F. Watt, *First resolution test results of the Atomki nuclear nanoprobe*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **449** (2019) 94-98.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2019.03.056>
- [83] I. Kovács, A. Kocsonya, P. Kostka, Z. Szőkefalvi-Nagy, K. Schrang, A. Krüger, M. Niecke, *Installation and performance of the Budapest–Hamburg proton microprobe*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **231** (2005) 21-25.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2005.01.019>
- [84] I. Bányász, I. Rajta, G.U.L. Nagy, Z. Zolnai, V. Havranek, S. Pelli, M. Veres, S. Berneschi, G. Nunzi-Conti, G.C. Righini, *Fabrication of optical channel waveguides in crystals and glasses using macro- and micro ion beams*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. **331** (2014) 157-162.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2013.12.042>
- [85] G. Devès, S. Matsuyama, Y. Barbotteau, K. Ishii, R. Ortega, *Characterization of Si p-i-n diode for scanning transmission ionmicroanalysis of biological samples*, Rev. Sci. Instr. **77** (2006) 056102.
<https://doi.org/10.1063/1.2198788>
- [86] R. Minqin, J.A. van Kan, A.A. Bettiol, L. Daina, Chan Yee Gek, Bay Boon Huat, H.J. Whitlow, T. Osipowicz, F. Watt, *Nano-imaging of single cells using STIM*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **260** 1 (2007) 124-129.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2007.02.015>

- [87] T. Kamiya, T. Sakai, M. Oikawa, T. Satoh, K. Ishii, A. Sugimoto, S. Matsuyama, *STIM imaging for mammalian cell samples before micro-PIXE analyses in air environment at JAERI Takasaki light ion microbeam system*, Int. Journ. of PIXE **9 3-4** (1999) 217-225.
<https://doi.org/10.1142/S0129083599000310>
- [88] Kun F., *Számítógépes modellezés és szimuláció*, Egyetemi jegyzet, Debreceni Egyetem Elméleti Fizikai Tanszék (2011).
- [89] T.J. Chung, *Computational Fluid Dynamics*, Cambridge University Press, (2002). ISBN: 0-521-59416-2
- [90] J.F. Ziegler, M.D. Ziegler, J.P. Biersack, *SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010)*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **268** (2010) 1818-1823.
<http://www.srim.org/>
- [91] G.W. Grime, *WinTRAX: A raytracing software package for the design of multipole focusing systems*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **306** (2013) 76-80.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2012.11.038>
- [92] <http://www.microbeams.co.uk/>
- [93] G.E.P. Box, M.E. Muller, *A note on the generation of random normal deviates*, Ann. Math. Statist. **29** (1958) 610-611.
<https://doi.org/10.1214/aoms/1177706645>
- [94] S.N. Fedosov, A.E. Sergeeva, *Transient photocurrents in UV-irradiated polytetrafluoroethylene coronoelectrets*, Soviet Physics Journal **33** (1990) 482-484.
<https://doi.org/10.1007/BF01325002>
- [95] <https://en.wikipedia.org/wiki/Polytetrafluoroethylene>
- [96] L.Z. Tóth, I. Rajta, *Beam divergence of the proton microprobe*, Atomki Annual Report 2010 (2011) 84.
<http://w3.atomki.hu/ar2010/ar2010.pdf>
- [97] L. Csedreki, *Experimental conditions for cross section measurements for analytical purposes*, Acta Physica Debrecina **XLVI** (2012) 25-35.
http://www.phys.unideb.hu/apd/sites/default/files/content/2012/2_csedrek_ilaslo_2012.pdf
- [98] L. Bartha, I. Uzonyi, *Ion beam dose measurement in nuclear microprobe using a compact beam chopper*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **161-163** (2000) 339-343.
[https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(99\)00924-6](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(99)00924-6)

-
- [99] J.W. Eaton, D. Bateman, S. Hauberg, R. Wehbring, *GNU Octave version 4.2.1 manual: a high-level interactive language for numerical computations*. 2017.
<https://www.gnu.org/software/octave/doc/v4.2.1/>
- [100] Y. Xue, D. Yu, J. Liu, Y. Wu, M. Zhang, J. Chen, W. Wang, R. Lu, C. Shao, L. Kang, J. Li, X. Cai, N. Stolterfoht, *Incomplete guiding of 90 keV $Oq+$ ions through a straight macrocapillary: Experiments and simulations*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **359** (2015) 44-52.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2015.07.044>