

K46454 sz. OTKA-kutatás zárójelentése

„Egzotikus atomfizikai folyamatok plazmákban és szilárdtestek felületén”

Témavezető: Pálinkás József

Bevezetés

A kutatás eredeti futamideje 2004-2007 volt, a témavezető kérésére ez 1 évvel meghosszabbodott, így a program ténylegesen 2008 végén fejeződött be. Az 5 év folyamán lényeges változás nem történt sem a résztvevők összetételében, sem a kutatási témákban. Azonban 5 év mégis elég hosszú idő ahhoz, hogy új, izgalmas témák kerüljenek a látóterünkbe, melyek közül néhányat, melyek tematikailag közel álltak azt eredeti célkitűzéseinkhez, részben jelen pályázat támogatásával elindítottunk. Ezek a témák (pl. kapillárisok, titán bevonása fullerénnel, stb.) külön pontban szerepelnek a beszámolóban.

A 46454 sz. kutatás egyik kulcsberendezése az Atomki elektron-ciklotronrezonanciás (ECR) ionforrása volt. Magán az ionforráson is sok átalakítás és fejlesztés történt az 5 év alatt, melyek a berendezést alkalmasabbá tették az adott kutatásra, vagy éppen a fejlesztés révén új kutatás volt elindítható. A fejlesztések többsége tudományos értékkel bír, konferenciákon bemutattuk, folyóiratokban publikáltuk. Ezért ennek a beszámolónak az első pontjában először röviden felsoroljuk az ionforrással kapcsolatos legfontosabb fejlesztéseket, azt követően pedig témák szerint csoportosítva a tudományos eredményeket.

1. Berendezésfejlesztés

Az ECR ionforrás klisztron-alapú mikrohullámú rendszere mellett üzembe helyeztünk egy haladóhullámú (TWT) energiaforrást is. Így az ionforrás ezentúl két különböző üzemmódban tud működni. Az eddigi (14.5 GHz, 10-2000 W) mikrohullámú egység szolgál ezentúl is nagytöltésű plazmák és nagyintenzitású ionnyalábok előállítására. Az új TWT-rendszer (8...12 GHz változtatható, 2-20 W) funkciója változatos alacsony ionizáltságú plazmák előállítása lesz elsősorban anyagkutatások számára.

Számítások és modellezés alapján megterveztünk és legyártottunk egy egyszerű ionlassítót. A 100-500 eV kinetikus energiára lassított Ar és Xe ionok potenciális energiája már összemérhető, vagy nagyobb a kinetikus energiánál, ami lehetőséget nyújt a magas töltés (potenciális energia) hatásának elkülönített vizsgálataira egyes speciális felületekre.

Az ECR ionforrásba beépítettünk egy mikrokemencét, melynek helyzetét üzemelés közben is változtatni tudtuk. A kemence pozíciójának és hőmérsékletének függvényében mértük az egy- és többszörösen ionizált fullerén ionok intenzitását. Bebizonyosodott, hogy a legjobb eredményt akkor kapjuk, amikor a fullerénkemence mélyen a plazmakamrában (a plazmában) van. C_{60}^+ esetén 500 nA, C_{60}^{++} esetén pedig több mint 1500 nA kivont áramokat kaptunk, melyek mindegyike, tudomásunk szerint, világrekord.

Az ECR ionforrást 2005-2006 folyamán jelentősen átalakítottuk egy, a világon is egyedülálló kétfunkciós berendezéssé. Alapkiépítésben a berendezés továbbra is kisméretű, magasan ionizált plazmát állít elő, melyből nagytöltésű ionnyalábok vonhatók ki. Egy másik elrendezésben, alacsonyabb mikrohullám frekvencián nagyméretű, de kevésbé lefosztott

plazmákat kapunk. Ekkor a berendezés elsősorban anyagkutatásra, fémfelületek plazma-kezelésére és plazma-fal kölcsönhatások tanulmányozására alkalmas.

Az eddigi 20-ról 30 kV-ra emeltük a maximális kivonó feszültséget. Az ionforrás mindkét nyalábcatornájába beépítettünk egy nyalábdiaosztikai egységet. A plazmakamra módosításával az eddigieknél magasabb mikrohullámú teljesítményt tudunk a kamrába becsatolni és azt hosszú időn át fenntartani. 1000 watt becsatolt teljesítménnyel sikerült Heszterű Ar ion nyalábot kapnunk (Ar^{16+}).

Az ionforrásról sok további információ található az ECR Laboratórium honlapján: <http://www.atomki.hu/atomki/ECR> .

2. Ion-felület kölcsönhatások

Az iparban, mikroelektronikában széles körben alkalmazott ionimplantáció és ionmaratási folyamatok eléggé ismert mechanizmusaival szemben a nagy töltésű ionok kölcsönhatása a szilárd testekkel még sok alap- és alkalmazott tudományos kihívást rejt magában. Ezek megismeréséhez azzal járultunk hozzá, hogy az eddigiekben vizsgált dielektrikumoktól (LiF, MgO, csillám) vagy félvezetőktől (Si, GaAs) illetve grafittól eltérően olyan funkcionális félvezetőkre koncentráltunk, amelyeken felületi mikro- és nanostruktúrák alakíthatók ki közvetlenül egy-egy vagy több nagy töltésű ion becsapódása következtében, valamint az átalakulások az egész rétegre hatva vezetnek új tulajdonságokhoz. Az említett kristályfelületeken végbemenő ion-szilárdtest kölcsönhatás eredményeként főleg az atomi deszorpciót vizsgálták, illetve a Coulomb-robbanás lehetséges mechanizmusát modellezték, bár ez utóbbival ellentétes, megmagyarázatlan eredmények is születtek. Kutatásainkhoz magas ellenállású félvezető, amorf és kristályos állapotok között szerkezetileg átalakítható fényérzékeny félvezető anyagokat választottunk: Se, AsSe, As_2S_3 és SeTe-típusú amorf kalkogenideket, illetve SbSJ ferroelektromos kristályokat. Mindkét anyag típusra jellemző a szerkezeti elemek jelentős anizotrópiája, a kovalens, ionos és gyenge van der Waals vegyi kötések együttes jelenléte, ami elősegíti a fény vagy más külső hatások által stimulált, elektronfolyamatokkal kísért szerkezeti átalakulásokat.

SbSJ egykristályokat hasítva atomi méreteken sima felületeket kaptunk, melyeket néhány milliméter nagyságú területen sugároztuk be ionokkal. Ugyancsak nanométer-skálán sík felülettel rendelkező kalkogenid rétegeket (~0,5 nm felületi érdesség) állítottunk elő az erre a célra kifejlesztett vákuumos párologtató rendszerrel. Az atomerő mikroszkópiai mérések alapján megállapítottuk, hogy a Xe^{20+} , Xe^{24+} kölcsönhatása nyomán a Se, SeTe, SbSJ minták felületén 1-5 nm magas, az alapjuknál 20-50 nm átmérővel rendelkező csúcsok alakulnak ki. Normál körülmények közepette ezek időben stabilak, az amorf kalkogenidekben lézerfény hatására kialakuló optikai amplitúdó-fázis vagy vastagsági reliefhez hasonlóan. A lézerfény, vagy a párhuzamosan vizsgált 100-200 keV energiájú protonnyalábok hatásához hasonlóan a jelenséget a gerjesztett nemegyensúlyi elektronok által kísért lokális kötésvaltozásokkal és szabad térfogat kialakulásával, illetve atomi transzporttal magyarázzuk. Az ilyen amorf-amorf átalakulás szélsőséges esete lehet a kalkogenideken ismert amorf-kristályos-amorf átmeneti ciklus, amelyet az optikai adattárolásban alkalmaznak. Bár esetünkben az egyes nanométeres elemek optikai paramétereinek megállapítása nem áll módunkban, megfelelő maszkolással készült elemek várható paramétereiről a nagyobb minták vizsgálatából következtethetünk, illetve ennek alapján dönthetünk a lehetséges optoelektronikai, nanofotonikai alkalmazásokról.

A nagy töltésű ionok potenciális energiájának hatását a vizsgált folyamatokra 200-500 eV kinetikus energiára lassított Ar- és Xe ionok alkalmazásával igyekeztük kiemelni. Kimutattuk, hogy a kinetikus energia csökkentése az egyedi ionok nyomainak tulajdonított

kiemelkedések méretének csökkenését eredményezte. Ez arra utal, hogy a vizsgált anyagcsoportban a felület közvetlen közelében érvényesülő kölcsönhatások nem effektívek, vagy a felületen zajló atommozgási folyamatok révén gyorsan eltűnnek. A néhány tíz vagy akár száz nm mélységben a réteg mélyébe hatoló ionok keltette hatása viszont stabil, amint azt a korábbi nagytöltésű és kissé nagyobb kinetikus energiájú (100-240 keV) Xe ionokkal végzett kísérleteinkben tapasztaltuk.

Ugyancsak erre utalnak a legutóbbi kísérleteink is, amelyek során a különböző töltésű Ne ionok által AsSe rétegben indukált optikai sötétedés (optikai elnyelési él eltolódás) mértékét vizsgáltuk. Kimutattuk, hogy a vékony amorf AsSe réteg sötétedése függ a bombázó 120 keV energiájú Ne^{q+} ($q=4..8$) töltésétől, azaz a réteg telítésbe jutott áteresztésének mértéke csökken a töltéssel, ami azt jelenti, hogy a nagyobb töltésű ion fékezési hossza rövidebb. Ez az eredmény hozzájárul a szilárd testben mozgó ionok egyensúlyi állapotához vezető folyamatok további megértéséhez és azok esetleges műszaki alkalmazásához, például félvezető nanoszerkezetek kialakításánál.

3. Titán implantátumok felületének módosítása

Az ion-szilárdtest kölcsönhatása következtében elsődlegesen a felület szerkezeti változásai figyelhetők meg, aminek sok esetben lényeges befolyása van az adott anyag, felület vegyi aktivitására, mechanikai, elektromos, optikai paramétereinek a változására és ebből kifolyólag akár az élettelen vagy élő környezettel való kölcsönhatására. A biokompatibilis anyagok, implantátumok kutatása nagymértékben éppen a felület és az élő sejtek kölcsönhatására fókuszál, és ennek tipikus példája az aránylag olcsó, kitűnő mechanikai tulajdonságokkal rendelkező titán implantátumok. A Ti ismert, oszteointegrálást elősegítő felületi módosításai között kiemelhetők az általunk is korábban elkezdett plazma érdesítések, valamint a felület biológiailag aktív anyagokkal való lefedése (például különböző kalciumfoszfátokkal). Folytatva a titánium felületére plazmafröccsintéssel felvitt hidroxipatit és trikálciumfoszfát szerkezeti kutatásait, kitértünk a Ti-fedőréteg határfelület morfológiai változásaira, különös tekintettel a mikro-vagy akár a nanométer skálán mérhető változásokra. Ezek a változások nem csak a határfelület szerkezetét (mikrométeres mélyedések, laterális érdesség), hanem összetételét is (oxidok keveréke) komolyan befolyásolja. A Ti felületének lézerkezelés utáni $\text{Ar}^{6+..8+}$ ionokkal való besugárzása további érdesítést okozott nanométeres skálán, ami kimutatható ugyan atomerő mikroszkóppal, de biológiai hatása csak külön orvosbiológiai, sejtenyésztési módszerekkel érhető el. Ebbe bekapcsolódtak a Debreceni Egyetem Fogorvostudományi Karának, valamint a Biofizikai Intézet munkatársai is. A humán embrionális pre-osteoblast sejtek tenyésztéssel végzett első kísérletek biztatóak, de a határfokok megállapítására a jövőben sokkal több specifikus kísérlet szükséges.

Ezen eredmények arra indítottak bennünket, hogy más típusú biokompatibilis fedőrétegeket hozzunk létre és tanulmányozzuk hatásukat. A szén fullerén formája egy ilyen lehetséges, eddig még sehol ki nem próbált fedőréteg. Nagysűrűségű fullerén (C_{60}) plazmát állítottunk elő úgy, hogy fullerén molekulákat párologtattunk be egy, csaknem az ECR plazmakamra centrumába helyezett 550-600 C hőmérsékletű mikrokemencéből. A plazma összetételét a kivont nyaláb spektrumának folyamatos elemzésével követtük nyomon. A fullerénplazma különböző tulajdonságú részeihez Ti mintákat helyeztünk, melyek felületén néhány órás kezelés során C_{60} réteg képződött. Egy másik mérésorozatban a C_{60} -at nagyon alacsony energiájú ionnyaláb formájában vittük fel a Ti felületére. A belövési energiától függően ép, részben roncsolt, vagy nagyjából roncsolt fullerénréteggel vontuk be azokat különböző vastagságban. Az így kezelt mintákon az első csontsejt növesztési kísérletek 2008-ban megtörténtek és sikeresek voltak. Az egyelőre alapkutatósi szinten folyó kísérletsorozattól

azt várjuk, hogy néhány éven belül egy lehetséges alternatív megoldásként klinikailag alkalmazható módszert tudjunk kifejleszteni.

4. Laboratóriumi asztrofizika

Az ATOMKI ECR ionforrásában előállított argon, xenon és vas plazmákról korábban több ezer röntgenfelvételt készítettünk, melyek kiértékelését 2004-ben fejeztük be a CERN ROOT programcsomagjának felhasználásával és továbbfejlesztésével. A xenon és xenon-argon (keverék) plazmák képeinek összehasonlítása során bizonyítást nyert, hogy az u.n. párolgásos hűtés jelensége zajlik az ECR-plazmákban: a könnyebb argon nagyobb mozgékonyága révén energiát visz el a xenon ionoktól, így azok magasabb állapotokig ionizálhatók. Ez az eredmény segítheti az asztrofizikai és más típusú plazmák megértését is.

Összeállítottunk és kalibráltunk egy CCD kamerával felszerelt Johann típusú röntgen spektrométert amelyet a washingtoni National Institute of Standards and Technology-tól (NIST) kaptunk a közös méréseinkhez. Méréseket végeztünk Washingtonban és Debrecenben asztrofizikai jelentőségű laboratóriumi nagytöltésű ion plazmákon, többek között hidrogénszerű Ti^{22+} ionok nagyfelbontású mérését. Az ATOMKI-ECRIS plazmakamrájából kilépő röntgensugarakat vizsgáltuk, többek között nemesgázok nagytöltésű ionjaiból (pl. Ar^{9+} - Ar^{15+}) kapott spektrumokat.

A NIST elektronnyaláb ioncsapdájánál (EBIS) láthatófény CCD kamerával és keskeny sáv szélességű színszűrőkkel állítottunk össze egy kísérleti berendezést. A színszűrőket úgy választottuk meg, hogy azok magas töltésállapotú ionok metastabil vonalait engedjék át, így a teljes ionfelhő leképezésére lehetőségünk nyílt. Az adatok intenzitás és térbeli eloszlás szerinti elemzésekor egy érdekes termodinamikai jelenséget figyeltünk meg, amely az ionok párolgási hűtésének és a hőmérséklet miatti térbeli eloszlásának közrehatásaként jön létre.

A NIST és a Vanderbilt egyetem kutatóival közösen kifejlesztettünk egy olyan molekuladinamikai számolásra épülő modellt, amely segítségével az EBIT plazma termodinamikai jelenségei tanulmányozhatóak.

Részt vettünk a NIST új röntgen-mikrokaloriméterének üzembe helyezésében és tesztelésében is. Az új berendezést a Harvard mikrokaloriméter csoportja fejlesztette ki. A tesztmérések eredményeképpen módosításokat kell végrehajtani a berendezés kriosztáján, ami lehetővé tette neonszerű vas állapotainak nagy felbontású mérését. Az Fe^{16+} és Kr^{26+} ionok röntgenspektrumából az asztrofizikai 3C/3D illetve 3s/3d folyamat vizsgálatát hajtottuk végre.

Elkészítettük és teszteltük egy lágy röntgen fotonok detektálására alkalmas CMOS detektorokkal felszerelt spektrométert. A fejlesztés során megoldottuk a detektorok kiolvasását és a számítógéppel való csatolást. Ezt részben helyi fejlesztésű elektronikával, részben pedig standard National Instruments illesztőelemekkel hajtottuk végre. A számítógépes vezérlést és adatfeldolgozást egy általunk LabView környezetben kifejlesztett szoftver végzi. A berendezést a Szegedi Egyetem lézeres laboratóriumában használtuk mérésekhez.

Felállítottunk Debrecenben egy olyan számítógépes szoftver rendszert, amely segítségével a NASA Chandra röntgenteleszkópjának nyers adatai elérhetőek és feldolgozhatóak. A rendszerrel röntgen felvételek térbeli és spektrális eloszlásainak kiértékelését végeztük el egy olyan objektumra (Casiopeia A szupernóva), amellyel az általunk kapott eredmények irodalmi adatokkal összevethetőek. Vizsgálataink elsősorban a robbanási középpont pontos meghatározására és a Sc térbeli eloszlásának megállapítására irányultak. A Sc térbeli eloszlása a karakterisztikus vonalának intenzitásából adódott.

A szoftvert úgy módosítottuk, hogy azzal az ECR plazma elemzésére kidolgozott rutinjaink alkalmazhatóak legyenek, azaz spektrális paraméterterképeket tudjunk előállítani. Ezzel lehetővé vált a vizsgált objektumok elem-, hőmérséklet-, sűrűség-eloszlás stb. paramétereit térbeli eloszlásának elemzése.

CTMC számolásokat futtatunk néhány elektronnal rendelkező nagy töltésű ion semleges gázatomokkal való ütközésére ($\text{Ar}^{17+} + \text{Ar}$, $\text{C}^{6+} + \text{He}$), amellyel asztrofizikailag jelentős töltéscsere folyamatokat vizsgáltunk. A számolások eredményeit a NIST-ben argon és kripton ionokkal végzett mérések eredményeivel hasonlítottuk össze.

Egyszeres és kétszeres ionizációs hatáskeresztmetszeteket határoztunk meg könnyű töltött részecskék és hélium atomok ütközésekor. A számításokat két-elektronos csatolt csatornás valamint három- és négy-részecskés CTMC módszerek segítségével végeztük el. A csatolt csatornás számítások igen jó egyezésben vannak a kísérleti eredményekkel.

5. Ütközési folyamatok számítógépes modellezése

Differenciális ionizációs hatáskeresztmetszetek meghatározására modellszámításokat végeztünk C^{6+} ionok és He atomok ütközésekor. A CTMC számítások eredményeit más elméleti munkákkal összevetve igen jó egyezés mutatkozik a CTMC és a torzított hullámú modellek által szolgáltatott adatok között.

Számításokat végeztünk fő- és mellék-kvantumszám szerinti befogási hatáskeresztmetszetek meghatározására Ar^{17+} -Ar ütközési rendszerre. A klasszikus pályájú Monte Carlo módszer által szolgáltatott hatáskeresztmetszet értékekkel röntgen átmenetek intenzitásértékeit becsültük meg kaskád legerjesztődésekben. A CTMC adatok felhasználásával értelmezni tudtuk a kísérleti eredményeket.

Számításokat végeztünk az $\text{Ar}(2p)$ héj ionizációs hatáskeresztmetszeteinek meghatározására, mint a szórási szög és az ionizált elektron energiájának a függvénye elektron és antiproton bombázás esetében. A kapott kétszeresen differenciális hatáskeresztmetszeteket az Ar LMM Auger vonalak PCI (Post collision interaction) torzításának leírására használtuk fel.

A fékeződést okozó erőkomponenst tanulmányoztuk nagy töltésű ionok és szilárdtest-felületek kölcsönhatásakor nagy ion és felület távolságok esetében. Elemeztük a részecske-lyuk, valamint a plazmon gerjesztés járulékát a teljes fékeződéshez. Kifejlesztettünk egy egyszerű módszert, aminek a segítségével képesek vagyunk figyelembe venni a plazmon gerjesztések véges vonalszélességét még nagy hullámhosszak esetében is.

Töltött részecskék energiavesztését határoztuk meg mikropilláris felületek belső falaival való kölcsönhatásokat valamint sűrű beesési szögeket feltételezve. Eredményeink azt mutatják, hogy korreláció van az ionok által elszenvedett energiavesztés és a szórási szögük között, mely első alkalommal ad lehetőséget a kapilláris anyagának dielektromos tulajdonságainak vizsgálatára nagy távolságok esetében.

Kisenergiájú C^{4+} ionok és hélium atomok ütközését vizsgálva a lövedék kötött állapotaiba való kétszeres elektronbefogási hatáskeresztmetszeteket összehasonlítottuk a legfrissebb kísérleti adatokkal. A lövedék szög szerinti differenciális hatáskeresztmetszetei 2 foknál nagyobb szórási szögek esetében igen jó egyezést mutatnak a kísérleti adatokkal.

Kr^{27+} ionok és O_2 , Ar és Ne atomok ütközése során meghatároztuk az (n,l) állapotszerinti elektronbefogási hatáskeresztmetszeteket a CTMC módszerrel. Az így nyert adatok segítségével értelmeztük a kísérleti röntgenspektrumokat.

Monte Carlo módszerrel kiszámítottuk kétkomponensű polietilén mintáról rugalmasan visszaszórt 1-8 keV energiájú elektronok hozamát és energia eloszlását a szögtartományban. Az elvégzett számítások azt mutatják, hogy ha viszonylag vastag mintáról rugalmasan

visszaszórt elektronok spektrumát nagy felbontással mérjük, akkor a kísérleti spektrumok kiértékelésénél és a kapott adatokból levonható következtetéseknél figyelembe kell venni a vegyes szórások adott esetre vonatkozó hatását.

6. Ionok áthaladása kapillárisokon

Az ECR-ionforrásból nagyon alacsony feszültségen (500 - 1000 V) vontunk ki Ne^{6+} és Ne^{7+} ionokat és 1-2 mm-es átmérőjű nyalábként 3-6 keV energiájú ionnyalábbal lőttünk alumínium-oxid rétegben kialakított, mindkét felületén nióbbiummal bevont 15 mikrométer vastagságú, 140 és 260 nanométer átmérője kapillárisokra. Azt vizsgáltuk, hogyan változik a nagy töltésű neon ionok száma és töltése a kapillárisokon való áthaladás után, a nyalábirány és kapilláristengely közti szög függvényében. Elsőként mutattuk ki az Al_2O_3 anyagú kapillárisok ionterelő képességét. Azt kaptuk, hogy a nyalábirányhoz képest 5 fokkal elforgatott 260 nm névleges átmérőjű kapillárisok a 3 keV energiájú, hatszorosan töltött neon ionok kb. 30%-át képesek a kapillárisok tengelyének irányába eredeti töltésállapotukat és energiájukat megőrizve eltéríteni. Tudomásunk szerint ilyen jellegű méréseket Magyarországon mi végeztünk először.

Később megépítettünk és teszteltünk egy új, korszerű multi-channel-plate (MCP) detektor rendszert, amelynek segítségével egyetlen lépésben lehet mérni a nanokapilláris mintából kilépő ionok teljes, kétdimenziós szögeloszlását. Az új rendszert beszereltük a kamrába, főbb karakterisztikáit bemértük. Megmutattuk, hogy ennél a detektálási technikánál nagy figyelmet kell fordítani az ion-felület kölcsönhatások során keletkező ultraibolya sugárzás által és az ionok által a detektorban keltett jelek szétválasztására. Méréseket végeztünk Al_2O_3 anyagú kapillárisokkal. Az első eredményeket konferenciákon ismertettük, és 2008-ban egy részüket már folyóiratban is közzeltük.

Az ionterelés jelenségének részletesebb megértése céljából szisztematikus kísérleteket végeztünk - alumínium-oxid nano-kapilláris fóliákkal és makroszkopikus méretű üveg mikrokapillárisokkal az ATOMKI-ECRIS-A ionforrás nyalábsatornáján. Különböző energiájú, nagy töltésű neon ($6+$, $7+$) és argon ($8+$, $9+$) ionnyalábokat vezettünk be a kapilláris mintákba, melyek eltérítő hatását egy ion-spektrométerrel és egy MCP detektorral vizsgáltuk. A kísérletek fő eredménye az volt, hogy az ionok mind a nanokapilláris mintákban, mind a nagyobb átmérőjű egyedi üveggapillárisokban transzportálhatók, és néhány fokos szögterületen belül jól irányíthatók a kapillárisok elfordításával. A kvantitatív skálázási szabályok jelenleg folyó felderítése részletesebb kiértékelést és további méréseket igényel.

Debrecen, 2009. február 27.