

Ionok ütközése atomokkal, molekulákkal és felületekkel: magasabbrendű folyamatok

Kutatási beszámoló

T046905

A projekt kutatási terve szerint három témakörben indítottunk kutatásokat: *i) a többszörös elektron-szórási folyamatok vizsgálatára ion-atom ütközésekben, ii) a hidrogénmolekula ionizációjában magasabb rendben fellépő interferenciajelenségek vizsgálatára és iii) az ion-felület kölcsönhatások témakörében a szigetelő kapillárisokban fellépő ionterelődési effektusok vizsgálata.*

A projekt munkáiba 2005 októberétől OTKA posztdoktori ösztöndíjasként bekapcsolódott Juhász Zoltán. Ezzel párhuzamosan egy új témakört is indítottunk *iv) az ionok és biológiailag aktív kis molekulák kölcsönhatásainak vizsgálatát.*

A projekthez kapcsolódóan elnyertünk egy nemzetközi együttműködést támogató OTKA pályázatot is (IN64319, “Az atomi ionizáció vizsgálata”) Ez a pályázat egy szélesebb nemzetközi együttműködésbe való magyar-amerikai közös bekapcsolódásra irányult. Röviden erről is írunk itt, de a részletesebb információkat erről az IN64319 projekt saját zárójelentése tartalmazza. A továbbiakban a beszámolót az egyes témakörök köré csoportosítjuk.

A többszörös szórási folyamatok vizsgálatát 2004-ben két mérésorozattal indítottuk. Egyet Berlinben, a Hahn-Meitner Intézet ECR laboratóriumában, 1 keV/nukleon bombázó energiánál, a másikat a debreceni 5 MV-os elektrosztatikus gyorsító nyalábján 50 illetve 75 keV/nukleon ionenergiáknál. A mérések során a Fermi-gyorsítással járó többlépcsős folyamatokat vizsgáltuk. A Fermi-gyorsítás az atomi ütközésekben fellépő különös jelenség, melynek során az ütközésből kilépő elektronok többször ütköznek a lövedék és a céltárgy magjával, és ezekben az ütközésekben szokatlanul nagy energiákra felgyorsulhatnak. Ezen folyamatok járulékát – várakozásainkkal és az elvégzett CTMC számolásainkkal összhangban – nagynak találtuk. A számolások kissé valószínűtlennek tűnő jóslatát, mely szerint a vizsgált járulék a spektrumban határozott csúcsokban, vállakban koncentrálódik, a kísérletek igazolták.

Széles bombázóenergia tartományban végzett ilyen méréseinkkel megmutattuk, hogy a lassuló nehézionok fékeződésének végső szakaszában a 10-200 eV-es energiatarományba eső elektronok emissiója igen jelentős folyamattá válhat. Ráébredtünk, hogy ez – egyebek között - a biológiai szövetek sugárkárosodásával kapcsolatban lehet nagy jelentőségű, pl. a nehézion besugárzásos terápiák tervezésekor. Ez volt az egyik motívumunk a COST P9 akciójába („Sugárkárosodás biológiai rendszerekben”) való bekapcsolódásra, majd ez lett ott az egyik témánk.

A továbbiakban (2005-2007) szisztematikusan folytattuk ilyen méréseinket, főként Debrecenben, az ATOMKI 5 MV-os elektrosztatikus gyorsítójának nyalábján, különböző ionenergiákon (30-75 keV/nukleon), immár molekuláris lövedékekkel és céltárgyakkal is. Az ütközések egy részében hatszoros elektronszóródási sorozatokat is tudtunk azonosítani. Legfontosabb eredménynek mégis az tekinthető, hogy kis (1-100 keV/u) ionenergiákon a többszörös elektronszórási folyamat járuléka elérheti a teljes elektronemisszió 5-10 százalékát, és a nagyenergiás elektronok kibocsátásában a folyamat domináns lehet. Elmélet és kísérlet szisztematikus összevetésével érdekes megfigyelést tettünk a Fermi-gyorsítással járó több-lépcsős folyamatokra vonatkozólag. A mért többszörös szórási csúcsokba eső CTMC „pályák” egyedi elemzése azt mutatta, hogy többszörös szórási szekvenciák kialakulásakor a klasszikus CTMC számolások szerint az elektronnak a nehéz magokon való minden egyes szóródásakor a klasszikus hatásintegrál igen nagy értékkel nő, ami elég speciális „molekulapályák” kialakulását jelzi. A mérések egyik fontos – elméletileg nem jósolt – eredménye az volt, hogy mind a molekuláris lövedékek, mind a molekuláris céltárgyak a többszörös elektronszórás szempontjából atomok csatolatlan halmazaként viselkednek, vagyis a többszörös szóródás egyedi sorozatai túlnyomórészt két meghatározott atomi centrumhoz kötődnek.

Ebben a témakörben 4 folyóiratcikket [10,15,29,30] jelentettünk meg, amelyből egy [29] a 2007-ig végzett munkát foglalja össze, és a sugárbiológiai vonatkozásokra is nagyobb súlyt helyez. Nemzetközi konferenciákon a témában 4 előadást tartottunk és több posztert mutatunk be. Jelenleg egy hosszabb közleményt írunk.

A hidrogénmolekula ionizációjában magasabb rendben fellépő interferenciajelenségek vizsgálatára 2004 októberében – nemzetközi együttműködésben - elvégeztük a tervezett mérést a franciaországi Caen-ban a GANIL nehézion-ciklotron nyalábján. Célunk itt a kétszeres szórással járó mintázatok pontos kimérése volt. Ezek mintázatait azonosítottuk, a hátraszögekben emittált elektronok spektrumait részletesen elemeztük, az interferencia-oszcilláció itt mutatkozó, felderítetlen eredetű frekvencianövekedését mértük meg pontosan. Ezen felül találtunk egy gyorsabban oszcilláló spektrumjárulékot is, melynek eredetét a projekt lezárulásáig sem sikerült tisztázni.

Hogy a koherens elektronemisszió jelenségét más ionenergia tartományban is megvizsgáljuk, még egy mérésorozatot végeztünk ebben a témakörben, ugyancsak Caen-ban, ugyancsak nemzetközi együttműködésben. Ezúttal kisenergiás $\text{He}^+ + \text{He}$ ütközésekben vizsgáltuk, vajon az átmenetileg formálódó He^{2+} kvázimolekulából történő elektronemisszió mutat-e koherens, kétcentrumú emisszióra utaló jeleket. Találtunk egy nagyon kis amplitúdójú, de szignifikáns, periódikus intenzitásingadozást a spektrumokban, ám ezek eredetét sem sikerült még tisztázni.

Jellemző erre a témakörre a mai napig tapasztalható, sőt inkább fokozódó, nagyfokú érdeklődés. Mindkét fenti munkánk is meglehetősen visszhangot váltott ki. Ez főként a viszonylag jól mérhető, de nehezen értelmezhető jelenségek miatt van így. A fokozódó aktivitás vitatható munkák megjelenésével is jár. Ez vezetett egy kritikai jellegű közleményünk (Comment) megjelentetéséhez a Phys. Rev. Letters-ben.

Ebben a témakörben 3 folyóiratcikket [] közöltünk. Konferenciákon a témában társszerzőink által tartott előadásokban jelentünk meg.

Lényegében az ion-molekula ütközések magasabbrendű folyamataihoz kapcsolódóan kezdünk egy új témába, az **ionok és biológiaiilag aktív kis molekulák kölcsönhatásainak vizsgálatába**. Az ionbombázás a molekula elektronhéjaiban többszörös lyukkeltéshez vezethet. Ez – a bombázó ion sebességétől függően - elektron-befogással és/vagy direkt ionizációval történhet. A többszörös elektronvesztést többnyire a molekula Coulomb-felrobbanása követi. A COST P9 akciójának keretében („Sugárkárosodás biológiai rendszerekben”, ld. fentebb is), magyar-német-francia-brit együttműködésben, kezdünk hozzá a molekulák ilyen felrobbanásának vizsgálatához. Első kísérleti eredményeinket a berlini Hahn-Meitner Intézetben kaptuk, és ezek a vízmolekula lassú (néhány keV energiájú) ionokkal létrehozott fragmentációjára vonatkoztak. Debrecenben pedig kidolgoztuk a gyorsabb ionokkal történő mérések módszerét. Debreceni kísérleteink azt mutatták, hogy a pontosabb mérésekhez jelentősen át kell alakítanunk a mérőberendezésünket. Ezt a munkát elkezdtük, de már csak idén kezdődő új pályázatunk keretében fejezzük majd be.

2005-októberében csatlakozott a pályázat résztvevőikhez Dr. Juhász Zoltán, egy OTKA poszt-doktori ösztöndíj (PD050000) keretében, részben ebben a témakörben, részben az ion-felület kölcsönhatások (lásd alább) témakörében. Ezt követően a molekula-fragmentációs vizsgálatok a jelen projekt kutatásainak súlyponti témájává váltak. A sugárbiológiai szempontból jelentős víz és metán molekulák széttörése során kilépő ionok és elektronok szög és energia-eloszlását vizsgáltuk először Debrecenben, majd 2006-ban és 2007-ben a franciaországi Caen-ban, az un. ARIBE komplexum egyik kisenergiás ionnyalábján, magyar-francia együttműködésben. A gyorsítódító és a költségek egy részét mint az ITS-LEIF (Ion Technology and Spectroscopy at Low Energy Ion Beam Facilities) FP6-os európai együttműködés felhasználó résztvevői (Az

ATOMKI ennek az együttműködésnek társult tagja) pályáztuk meg és nyertük el. 2007 májusa óta a témát egy magyar-francia TÉT projekt (F-30/2006) is támogatja.

Szisztematikus mérésorozatunkban a különböző szimmetriájú, egyszerűbb molekulák ionbombázással létrehozott széttörése során kilépő töltött fragmentumok eloszlását mértük. Néhány fragmentációs csatornában határozott anizotrópiát sikerült találnunk, és ennek jellege lényegesen különbözött metán, benzol és vízmolekulák esetén. Az értelmezés során modellszámolásokkal reprodukálni tudtuk a direkt mag-mag kölcsönhatások fragmentációs járulékát, és megértettük a kilépő töltött részek ütközés utáni kölcsönhatásának szerepét. Találtunk egy olyan fragmentumion-energia tartományt, ahol a direkt mag-mag kölcsönhatások és a Coulomb-robbanás összjátékaként a kilépő protonok (hidrogénionok) spektruma jelentős anizotrópiát mutat. Mindezekon felül a legkevésbé szimmetrikusnak tekinthető vízmolekula esetén az egyes fragmentációs csatornákat (melyek meghatározott protonenergia tartományba esnek) különböző anizotróp viselkedés jellemzi. Itt tehát maga a többszörös ionizáció (illetve elektronbefogás) folyamata tűnik érzékenynek a molekula ütközés előtti orientációjára.

Ebben a témakörben 3 folyóiratcikket [] közöltünk. Nemzetközi konferenciákon 3 előadást tartottunk és sok posztert mutattunk be. A fentiekben vázolt összefüggések jó része azonban új eredmény, melyekből most írunk cikket, és melyek alapján új méréseket készítünk elő.

Az **ion-felület kölcsönhatások** területén a szigetelő fóliákban kialakított mikro- illetve **nanokapillárisok** un. **ionterelő hatását** vizsgálatuk. Ez a nemrég (2002) felfedezett hatás abban áll, hogy a szigetelő fóliákban létrehozott néhány száz nm átmérőjű, 10-15 mikron hosszúságú párhuzamos kapillárisok sokasága képes arra, hogy még a 10-15 fok alatt belépő, néhány keV energiájú, erősen töltött ionok (pl 7-szeresen töltött neon ionok) jelentős részét eredeti irányától eltérítse, és azok – eredeti energiájukkal, eredeti töltésállapotukban - a kapillárisok tengelye irányában távozzanak.

Ezen a területen a projekt során nagyon sok fejlesztő munkát kellett végeznünk. Először kidolgoztuk a debreceni ECR ionforrás mellett, a meglévő vákuumkamrában elvégzendő módosításokat, és megszerveztünk egy szélesebb körű együtt-működést a Debreceni Egyetem fizikai tanszékei és az ATOMKI több osztályának bevonásával, amely nemcsak a szigetelő nanokapillárisok komplex vizsgálatára, hanem azok előállítására is irányult. Ma (2008 február) már elérkeztünk odáig, hogy néhány héten belül mérni fogjuk az első, ATOMKI-ban előállított kapilláris minták ionterelő képességét. Maga a fejlesztés (mintatartó, mozgató, spektrométer és detektorrendszerek) jelentős erőfeszítéseket igényelt, anyagi téren is. Meg kell itt említenünk TO46454 és a TO42729 sz. tematikus OTKA pályázatok segítségét.

Az ion-felület kölcsönhatások területén 2005 novemberében sikerült elérnünk odáig, hogy megkezdhattuk a szigetelő kapillárisokban létrejövő ionterelődés kísérleti vizsgálatát az ATOMKI ECR ionforrásának nyalábján. Az elsőként vizsgált Al_2O_3 anyagú nanokapilláris mintákat belga együttműködésből kaptuk (ULC, Leuven). Elsőként sikerült kimutatni, hogy ezeknek a kapillárisoknak az ionterelő képessége igen jó, a 3 keV-es energiájú, Ne^{6+} ionok beesési irányához képest 10 fokkal elforgatott, 250 nm átmérőjű, és 15000 nm hosszú kapillárisokon az ionok egy része töltéscsere nélkül képes áthaladni, és a kapillárisok tengelyének irányában lép ki. A 2006 elején intenzíven folytatott méréseket az ECR ionforrás klisztronjának meghibásodása szakította félbe hosszabb időre.

Az első eredményeket ekkor közöltük, majd újabb, hosszabb fejlesztő munka következett. Ma már rendelkezünk egy energia-diszperzív és egy kétdimenziós, helyzetérzékeny detektorrendszerrel, és képesek vagyunk igen érzékeny árammérésre is. A méréseket 2007 végén indítottuk újra.

Közben előrehaladtunk a kapillárisokban létrejövő ionterelődés elméleti modellezésében is. Itt a realiztikus leírást lehetővé tevő módszereket dolgoztunk ki, nevezetesen a határoló aranyrétegek, a dielektrikum és a csatornasűrűség hatásait sikerült beépítenünk a leírásba. Végül 2007 novemberében bekapcsolódtunk polietilén tereftalát anyagú kapilláris minták vizsgálatába is Groningen-ben (Hollandia), szintén az ITS-LEIF együttműködés keretében.

A témakörben egy folyóiratcikkünk jelent meg (Nanotechnology), egy cikkünk beküldés előtt áll. Az eredményeket több nemzetközi konferencián ismertettük, két előadást tartottunk és több poszttert mutattunk be. A téma igazi kibontakozása a fejlesztés nagyjának lezárultával, a következő hónapokban várható.

A **magasabbrendű atomi ütközési folyamatok** klasszikus példái a **két elektron átmenetével járó folyamatok**. Részben a jelen pályázat, részben egy magyar-görög kormányközi TÉT projekt keretében elemeztük a lítiumszerű (háromelektronos) oxigén és fluor lövedékionokon nagysebességű ütközésekben végbe-menő kételektron-átmenettel járó folyamatokat, elsősorban az úgynevezett transzfer-loss folyamatot. Megmutattuk, hogy egy metastabil kvartett állapot ($1s2s2p\ 4P$) keltési hatáskeresztmetszetét a céltárgyatomokról a lövedék magasabb héjaira befogódó elektronok teljes hozama szabja meg, amivel megmagyaráztuk egy hosszú időn át nem értelmezhetőnek tekintett, anomálishan nagy hatáskeresztmetszet eredetét.

Ebben a témában 2 folyóiratcikkünk jelent meg, egyet pedig közlésre beküldtünk. Konferenciákon két előadáson és két poszteren került ismertetésre. Itt említünk meg egy, a többszörös ionizáció statisztikus vonatkozásairól tartott konferencia-előadást is.

A jelen pályázathoz kapcsolódva nyertük el az IN64319 számú, “**Az atomi ionizáció vizsgálata**” című, nemzetközi együttműködésben végzett kutatás kiegészítő támogatására beadott pályázatunkat. Ennek célja egy többoldalú együttműködés kialakítása, melynek keretében az Old Dominion University (Norfolk, Virginia, USA) és az ATOMKI közösen kapcsolódik be a Darmstadtban most létesülő FAIR gyorsítókomplexumnál a SPARC (Stored Particle Atomic physics Research Collaboration) atomfizikai felhasználói együttműködésbe, és járul hozzá annak terveihez, illetve annak jövőbeni felhasználójaként vesz részt a fizikai programtervek kialakításában. Az ezzel kapcsolatos munkáról az IN64319 számú pályázat zárójelentésében számolunk be. Itt csak egy folyóiratcikket és 3 konferencia-előadást említünk meg a témában.

Összefoglalva, a projekt fontosabb tudományos eredményei:

Ionok és atomok illetve molekulák ütközéseiben megmutattuk, hogy kis (1-100 keV/nukleon) ionenergiákon a **többszörös elektronszórási folyamat** (az un. Fermi-shuttle mechanizmus) járuléka elérheti a teljes elektron-emisszió 5-10 százalékát, és a nagyenergiás elektronok kibocsátásában ez a folyamat meghatározó lehet.

A **hidrogénmolekula ionizációjában magasabb rendben fellépő interferenciajelenségek** közül pontosan megmértük a másodrendű folyamat járulékanak szögeloszlását. Találtunk egy magasabb frekvenciájú komponenst is, melynek értelmezése egyenlőre nyitott kérdés.

Ion-molekula ütközésekben megmértük a kilépő molekula-fragmentumok szög és energiaeloszlását, és értelmeztük annak anizotróp jellegét.

Az **ion-felület kölcsönhatások** területén a szigetelő fóliákban kialakított **nanokapillárisok** un. **ionterelő hatását** vizsgálatuk. Felépítettük az ehhez szükséges mérőberendezést, majd elsőként kimutattuk és megmértük alumíniumoxid nanokapilláris minták ionterelő képességét.

Elemeztük a lítiumszerű lövedékionokon végbemenő **kételektronos**, un. transzfer-loss **folyamatot**. Megmutattuk, hogy egy metastabil kvartett állapot keltési hatáskeresztmetszetét a lövedék magasabb héjaira befogódó elektronok teljes hozama szabja meg, amivel megmagyaráztuk egy anomálishan nagy tekintett hatáskeresztmetszet eredetét.