

Részletes beszámoló a 83886 K sz. OTKA projekt

„Ionterelődési jelenségek szigetelő nano- és mikropillárisokban”

keretében végzett munkáról

A projekt fő célkitűzése az volt, hogy hozzájáruljon az ún. ionterelődés jelenségének mélyebb megértéséhez. 2002 óta ismert, hogy szigetelő fóliákban kialakított, mikronnál kisebb átmérőjű kapillárisok képesek arra, hogy kiloelektronvoltos mozgási energiájú ionok irányát jelentősen megváltoztassák anélkül, hogy azok energiája, vagy töltésállapota változna. Ezt azért tudják megtenni, mert az ionok egy része úgy tölti fel az ionok irányához képest megdöntött kapilláris falát, hogy a többi a kapilláris tengelyirányába terelődik, és átjut rajta. Önszervező folyamatról van szó, melynek részletei önmagukban is, az alkalmazások szempontjából is érdekesek. A projekt tervezésekor a helyzet az volt, hogy a jelenséget számos esetben kimutatták, ám a mérési eredmények között elég gyakran ellentmondások jelentkeztek. Így az elméleti tárgyalás sem tudott a kísérleti anyagra kellőképp támaszkodni. Egyértelművé vált, hogy a folyamatok megértéséhez és az alkalmazások kidolgozásához szigorúbb, szisztematikus munkára van szükség. Projektünkkel ebben a munkába kívántunk részt venni, és az akkor még nyitott kérdésekből minél többet tisztázni.

Ezt a célkitűzést teljesítettük. Sikerült közelebb jutnunk ennek az önszervező folyamatnak a megértéséhez az éppen általunk észlelt blokkolódási jelenségkör és a kapillárisok belsejében kialakuló vezetési mechanizmusok vonatkozásában. Tanulmányoztuk a kapillárisok irány szerinti szögészorását, és annak hatásait az átvitelre. Új, még értelmezésre szoruló jelenségeket találtunk, és közöltünk.

Első eredményeink egyike is egy addig nem észlelt viselkedés megfigyelése volt. Olyan váratlan jelenséggel találkoztunk, amely kritikusnak látszott a jövőbeli alkalmazások szempontjából. Ez a kapillárisokon történő átvitel blokkolódása volt [1, 2]. Ennek első észlelése után attól lehetett tartani, hogy ez az ionterelődés kialakulása után általánosan bekövetkező végkifejlet [3]. Úgy tűnt, hogy a blokkolódás az alkalmazásokat is lehetetlenné teheti. Felmértük a helyzetet, és azt találtuk, hogy a legtöbb addig végzett mérés túl rövid ideig tartott ahhoz, hogy a blokkolódást ki lehessen mutatni, vagy zárni.

Egyik kutatási irányunk tehát, amely a teljes projektet végigkísérte, az volt, hogy a terelődési folyamat kialakulását hosszabb időskálán vizsgáljuk. Azt találtuk hogy vannak egyáltalán nem blokkolódó minták, vannak részlegesen blokkolódók, és olyanok is, melyek látszólag nem különböznek lényegesen az előbbiektől, kezdetben igen jó átvitelt “ígérnek”, idővel mégis teljesen elzáródnak. Ezeket a méréseket folyamatosan kísérték a csoportunkon belüli, és a másokkal (elsősorban legfontosabb együttműködő partnerünkkel, Nikolaus Stolterfoht-al) folytatott viták, az adatok értelmezése és a mechanizmus feltárásának stratégiája körül. Vitáink új méréseket generáltak, melyeket mindmáig folytatunk. Mára kialakult az a konszenzus, amelyet a folyamat megértéseként élünk meg, és amely lehetővé tette egy közlemény megjelentetését [4], egynek beküldését [5], és egy átfogó közlemény írását, mely utóbbin még

dolgozunk. Sikerült tisztáznunk, hogy a blokkolódás az anyagjellemzőktől és az ionenergiától függő jelenség, mely az alkalmazások szempontjából fontos energiatartományokban, a minták többségénél elkerülhető. Ez igen fontos, megnyugtató eredmény a jövőbeni alkalmazások szempontjából. A fellélegzés ára egy hosszú vizsgálatsorozat és sok-sok vita volt.

Az Atomki Van de Graaff gyorsítójának mikronyalábján az ionterelésre alkalmasnak bizonyuló minták geometriai tulajdonságait az un. ion-transzmissziós spektroszkópia módszerével vizsgáltuk, azok felületét néhány mikronos átmérőjű, megaelektronvoltos energiájú és igen kis szögű protonnyalábokkal letapogatva. Szabályos lyukelrendezésű, alumíniumoxid mintáknál mezoszkopikus doménszerkezetet találtunk, ionbesugárzással és maratással készített, szabálytalan elrendezésű polikarbonát mintáinknál viszont a kapillárisok irányultsága folyamatos eloszlást mutatott [6].

Ugyancsak a Van de Graaff gyorsító mellett vizsgáltuk az ionterelést nem hengeres csatornáknál. A párhuzamos, sík üveglemezek közé lőtt ionnyalábok terelődését mások is vizsgálták, méréseinkkel mi kiterjesztettük ezeket a vizsgálatokat a megaelektronvoltos ionok tartományára. Eredményeink arra mutatnak, hogy terelődés jelensége itt is létezik, de annak létrejöttében valószínűleg a felületi ioncsatornázódás (surface channeling) a domináns folyamat. [7].

A nagyenergiás nyalábok terelése üvegszerkezetekkel az alkalmazások egyik fontos területe, ma már több helyen is alkalmazzák biológiai és orvosi kutatásokban pl. sejtalkotók szelektív besugárzására. Alacsonyabb, és közepes energiákon a folyamatok itt még érdekesebbek lehetnek. Beszereztünk és vizsgáltunk olyan, nagy (50% körüli) geometriai áteresztő-képességű üvegkapilláris mintákat, melyeket mikrocsatornás elektronsokszorzókat gyártó üzemen készítettek, de nem vonták be őket jó szekunder emissziót biztosító félvezető réteggel. A sűrű, szabályos elrendezésű, 3-7 fokban megdőntött mikroszkopikus kapillárisokat tartalmazó mintában a kialakuló átvitel energiafüggését mértük. Azt találtuk, hogy alacsonyabb ionenergiákon (3-6 keV) az átvitel szinte azonnal blokkolódik, majd egy hosszú, kaotikus szakasz után kialakul egy lassan növekvő, regulárishoz tartó átvitel. Nagyobb energiákon (15-20 keV) csak részleges blokkolódás alakult ki, de a közelítőleg szabályos átvitel eléréséhez itt is egy hosszú, kaotikus jelenségekkel teli szakasz vezetett. A kaotikus szakaszokban az átvitel csak bizonyos irányokban jött létre, majd ezek az irányok jól láthatóan változni, "vándorolni" kezdtek, végül lassan egymásba olvadtak. [8]. Bár több elméleti együttműködőt próbáltunk megnyerni, és vannak is formálódó elképzelések, a jelenség értelmezése mai napig viták tárgya.

A projekt legtöbb mérése és legfontosabb eredményei a felületi vezetés mechanizmusának felderítésére vonatkoznak. A terelési jelenség kialakulásának szakaszában (az un. feltöltődési szakaszban) a viszonyok elég bonyolultak. A kapillárisokba befutó ionáramot csak közvetetten tudjuk mérni, mert a teljes ionáram térbeli eloszlását nem ismerjük pontosan. A kapillárisba belépő ionok egy része a kapilláris falát tölti, onnan pedig egy kiürítő áram viszi el a töltésüket a határoló, földelt elektródákhoz. Az ionok másik részét a feltöltött falak által létrehozott terek átvezetik a kapillárison, ezt a komponenst tudjuk mérni. Ingadozó bemenő áramok esetén ennek a feltöltődési szakasznak a mérése önmagában nem teszi lehetővé a felületi vezetési

mechanizmusok vizsgálatát a kapilláris belsejében. Befutó ionáram nélkül azonban csak egyetlen áramkomponens van, a kiürítő áram. Ilyenkor, az ún. letöltődési szakaszban is lehet viszont az átvitelt mérni, ha nagyon rövid időre bekapcsoljuk az ionáramot, majd az átvitel megmérése után azonnal kikapcsoljuk. Ez igen nehéz mérés. Egyrészt biztosítanunk kell, hogy a 6-8 órás mérés alatt a tesztimpulzusok befutó áramai “szabványosan” érkezzenek, mindig ugyanoda, lehetőleg ugyanolyan sűrűségeloszlással, másrészt, hogy a rövid tesztimpulzus ne vigyen be annyi töltést a kapillárisba, amennyi befolyásolja a letöltődés folyamatát. Ezt a módszert kidolgozva a projekt folyamán több méréssorozatot végeztünk. Fokozatosan értük el azt az állapotot, hogy reprodukálható, konzisztens eredményeket kapjunk. A konferenciákon és előzetes közleményekben történő bemutatás után az idei évben még elég éles, és hosszas vitákat folytattunk az immár megbízható adatok értelmezéséről. Ezek alapján elkészült az a közlemény, melyet – ha minden résztvevő áldását megkapja - be tudunk küldeni a Physical Review A-hoz.

A kéziratot már feltöltöttük a REAL repozitóriumba [9], ahol hozzáférhető. Eredményeink közül kiemelném, hogy egy nemlineáris felületi vezetési modell keretében mind a feltöltődési, mind a letöltődési szakaszokon mért adatokat értelmezni tudjuk két, azonos anyagú, de különböző kapillárisűrűségű minta esetén, több döntési szögben végzett mérésekre. A meghatározott anyagfüggő paraméterek gyakorlatilag állandók. Fontos információ az is, hogy a felületi vezetőképesség mért értéke igen alacsony. Ez arra utal, hogy a kapillárisok belseje valószínűleg tiszta, szennyező rétegektől mentes felület. Ez az eredmény eléggé meglepő, de éppen ezért informatív.

Az eddigiekből is kitűnik, hogy a projekt tervezett ütemezését nem tudtuk tartani, ezért kellett hosszabbítást kérnünk. A munka igen dinamikusan indult, az első két évben szinte mindegyik téma felvetésre került, vagy el is végeztük az első méréseket, miközben jelentős fejlesztésekre is sor került. A projekt harmadik évében azonban, a munkatervhez képest a kísérleti munkában lelassult az előrehaladás. Ez főként abból eredt, hogy Groningenben az - elsősorban magfizikai központnak számító - KVI jövője bizonytalanná vált, és az atomfizikai laboratóriumot át kell költöztetni az egyetemre (RUG). Ott tervezett méréseinket a tárgyévben már nem tudtuk folytatni, munkaprogramunkat ennek megfelelően módosítanunk kellett. Később kiderült, hogy méréseinket ott egyáltalán nem tudjuk folytatni, és ez újabb módosításokat igényelt. Úgy döntöttünk, hogy valamennyi mérésünket Debrecenbe csoportosítjuk át. Ez sikeres is volt, de jelentős késéseket okozott. Eredeti elképzeléseinkből nem került sor a Londonban tervezett, pozitron-terelődési mérésekre sem. Ez kívül esett döntési körünkön, az ottani berendezésen végül is más kísérleti programot folytattak.

Terveinknek megfelelően előállítottunk kapilláris mintákat a VdG mikronyalábjának segítségével. A kapillárisokat 50 μm vastag polimetil-metakrilát (PMMA, plexi) lapkákból, 1 MeV-es fókuszált protonnyalábbal alakítottuk ki, majd lúgos folyadékban (NaOH) maratjuk a nyomköteget. A nyalábot 10-20 μm -enként léptettük. Egyedi ionnyomok nem voltak képesek megfelelő roncsolást létrehozni. Kapillárisonként 200-300 proton esetén sikerült a lapkák átfúrását biztosítani. A nyalábfolt és a maratás paramétereinek változtatásával kerestünk optimumot, de az elérhető legkisebb kapilláris átmérő 10 μm volt, kétoldalt enyhén kúpos geometriával. Ezek a minták 10 fokos dőlésszögnél (ahol az ionterelés átviteli hatásfoka

általában már százalék alatti) még jelentős közvetlen geometriai átvitelt adtak. A kapott 1:5 átmérő-hossz arány sajnos nem volt alkalmas arra, hogy azzal a PMMA ionterelési képességeit vizsgáljuk. Más anyagokkal is kísérleteztünk, de több próbálkozás után, ezt a kutatási irányt fel kellett adnunk.

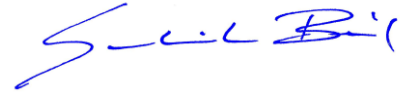
Ugyanakkor – alapkutatási projektek esetén nem szokatlan módon - az eredeti tervek kidolgozásakor még nem tudtuk, hogy rábukkanunk a blokkolódás addig ismeretlen jelenségére, amely a további kutatások, és eredmények jelentős részét adta. Ide sorolható a fentebb már említett, az üvegkapilláris array-ben tapasztalt, bonyolult - kaotikus szakaszokat is tartalmazó - feltöltődési dinamika is.

A projekt futamideje alatt jelentősen továbbfejlesztettük az ECR ionforrás mellett üzemelő kísérleti kamránkat. Szerencsések voltunk, mert a mágneses árnyékolás felújítása után, még a projekt elején kaptunk egy másik csoporttól egy – a beszerezni tervezettnél pontosabb elemeket is tartalmazó - goniométer rendszert, amelyet azután fokozatosan bővíteni tudtunk. Új mérésvezérlő és kiértékelő elektronikát készítettünk, melynek szoftverét is folyamatosan fejlesztettük. Kidolgoztunk egy mérési eljárást nagyon kis átvitt intenzitások rövid mintavételekből álló, megbízható mérésére, így lehetővé vált a minták letöltődési folyamatának hosszú idejű, pontos mérése. Ez tette lehetővé a felületi vezetési mechanizmusok feltárása terén elért előrehaladást. Kevésbé volt szerencsés tényező, hogy vákuumszervünk többször meghibásodott, és új szivattyúkat, alkatrészeket kellett beszereznünk. Ugyanígy cserélnünk kellett meghibásodott egyéb eszközeinket (oszilloszkóp, mérésvezérlő számítógép) is. Ez jelentősen terhelte a projekt költségvetését, de a teljesítést végül nem veszélyeztette. Ez főként annak köszönhető, hogy a VdG gyorsító mellett végzett méréseink [6, 7], megmutatták, hogy az ottani energiatartományban tanulmányozható folyamatok az eredeti elképzelésekhez képest jóval kisebb instrumentális fejlesztéssel is vizsgálhatók. Fő kísérleti kamránk a projekt kezdetén is jónak számított, ma pedig a tárgykörben végzendő szinte minden szóbjajhető mérésre alkalmas.

Összefoglalva a fentieket, kutatási projektünk a kapilláris kötegek ionterelésének vizsgálatában két területen is jelentős eredményeket hozott. Egyik a *blokkolódási jelenségek* felfedezése, feltérképezése és megértése, a másik a kapillárisok belsejében a folyamatot szabályzó *nemlineáris vezetési mechanizmus* részletes kísérleti vizsgálata, azonosítása, és elméleti értelmezése. Ehhez csatlakozott egy eddig nem tapasztalt, kaotikus szakaszokat is tartalmazó feltöltődési mód észlelése és ismertetése, valamint a témakörbe eső más vizsgálatok. Munkánkról több nemzetközi konferencián tartottunk előadásokat. Több konferencia-kötetben megjelent előzetes közleményünk mellett hét SCI folyóiratcikkünk jelent meg, egy bírálati szakaszban van, egy pedig beküldés előtt áll. A projekt váratlan nehézségei ellenére sok kísérletet végeztünk, és ehhez új módszereket is ki kellett fejlesztenünk. Az utolsó két évet (a hosszabbítással együtt értve) intenzív viták jellemezték a csoporton belül és kívül (együttműködő partnerünkkel és érdeklődő kollégákkal) egyaránt. Ez gyakran nem egy cikk lezárásához, hanem újabb mérésekhez vezetett. Ez az oka annak, hogy csak mostanra éreztem úgy, hogy a projekt fő eredményeit legalább nagy vonalakban be tudom publikációinkban is mutatni. Ezúton kérek elnézést a zárójelentés késéséért. Egyéb, sűrűsödő feladataink és más

problémák mellett ennek fő oka, hogy szerettem volna ezt az állapotot elérni. Így is marad egy-két olyan jövőbeni közlemény, melyben a jelen támogatásért köszönetet fogunk mondani. Végül megemlíthető még, hogy egy, a témában készülő PhD disszertáció hamarosan védeésre kerül majd.

Debrecen, 2016-12-12



Sulik Béla

Hivatkozások:

- [1] Juhász et al., NIM B 279 (2012) 177-181
- [2] Stolterfoht et al., PRA 83 (2011) 012901
- [3] Stolterfoht et al., PRA 88 (2013) 032902
- [4] Stolterfoht et al., P. NIM B 387 (2016) 96–102
- [5] Stolterfoht et al., ***Role of conductivity for the production of charge patches by ions guided in capillaries***, Submitted to NIM B on Nov. 7, 2016, <http://real.mtak.hu/id/eprint/42531>
- [6] Gál et al., NIM B 269 (2011) 232
- [7] Tőkési et al., NIM B 279 (2012) 173
- [8] P. Herczku et al, NIM B 354 (2015) 71-74
- [9] Z. Juhász et al.: ***Conductivity mechanism probed by ion transmission through nanocapillaries during the discharging process***, beküldés előtt Phys Rev A-ba, <http://real.mtak.hu/id/eprint/42995>