# KOINCIDENCIA ELEKTRONSPEKTROMÉTER RENDSZER FEJLESZTÉSE ÚJ ANALIZÁTOR FOKOZAT MEGÉPÍTÉSÉVEL

Paripás Béla<sup>1</sup>, Palásthy Béla<sup>2</sup>, Szilágyi Attila<sup>3</sup>, és Takács György<sup>4</sup>

<sup>1</sup>egyetemi tanár, Miskolci Egyetem, Fizikai Tanszék <sup>2</sup>egyetemi docens, Miskolci Egyetem, Fizikai Tanszék <sup>3,4</sup> egyetemi docens, Miskolci Egyetem, Szerszámgépek Tanszéke 3515 Miskolc, Miskolc-Egyetemváros, <sup>1</sup>e-mail: <u>fizpari@uni-miskolc.hu</u>

#### Összefoglalás

A Fizikai Tanszék koincidencia elektronspektrométer rendszerének szimpla CMA analizátora – elsősorban a magas beszóródó elektron háttere miatt – számos mérési hibának a forrása. Ezért ezt az analizátort is kiegészítettük egy, a vákuumkamrába éppen beférő kisebb méretű, második analizátor ütemmel, amelyet a Szerszámgépek Tanszékén terveztek és építettek meg. A cikkben bemutatjuk az új mérőrendszert és a vele végzett első méréseket, összevetve azokat a korábbi mérésekkel is. Az előzetes várakozásainknak megfelelően jelentős javulást értünk el a mérőrendszerünkben.

Kulcsszavak: elektron spektrometria, Auger-elektron, koincidencia mérés

#### Abstract

The single pass CMA analyser of the electron spectrometer system of the Department of Physics – mainly because of its high scattered electron background – was the source of several experimental problems. Therefore we have completed this analyser with a smaller (suitable into our vacuum chamber) second pass one, which was planned and manufactured at the Department of Machine Tools. In this paper we present this new improved spectrometer system and the first measurements comparing these results to the previous ones. As we expected we got significant improvement in the measurement system.

Keywords: electron spectrometry, Auger electron, coincidence measurement

## 1. Bevezetés

Az elektronütközéssel létrehozott atomi folyamatok tanulmányozására már régóta használunk elektrosztatikus energia analizátorokat tartalmazó elektron spektrométereket a Fizikai Tanszék elektronspektrometriai laboratóriumában. Analizátoraink hengertükör típusú analizátorok (cylindrical mirror analyzer, CMA). Ezek különleges helyet foglalnak el elektrosztatikus energia analizátorok között, mivel adott energia felbontás mellett ezekkel lehet elvileg a legnagyobb detektálási térszöget és ezáltal a legnagyobb hozamot elérni. A nagy detektálási térszög teszi lehetővé azt, hogy spektrométereinkkel az atomi külső héj folyamatoknál kisebb hatáskeresztmetszetű belső héj folyamatokat is tanulmányozzuk. Ez hagyományosan a szórt lövedék elektron, a belső-héj ionállapot keletkezésekor kibocsájtott

ún. ionizációs elektron és az ionállapot elbomlásakor keletkező Auger-elektron szög- és energiaeloszlásának (fajtánkénti külön) mérésével történhet.

Lényegesen több információt kaphatunk azonban a vizsgált belső-héj folyamatokról, ha az egy atomból eredő fentebb említett három elektront (vagy legalább kettőt közülük) egyidejűleg detektálunk. Az utóbbi években egy ilyen ún. koincidencia rendszert építettünk ki, amelyben tehát külön regisztrálódnak azok az események, amikor a rendszerhez tartozó két spektrométer az egy atomban lezajló folyamatból származó két elektront egyidejűleg detektálja. Sajnos ennek elég kicsi az esélye: részben azért, mert a belső héjakról általában kevesebb elektron jön, mint a külsőkről. Másrészt a koincidencia detektáláshoz mindkét elektronnak (megfelelő szögben és energiával) el kell találnia az adott spektrométer belépő nyílását. A méréseink tehát (a CMA típus ellenére is) meglehetősen időigényesek, egy-egy publikációnkhoz [1, 2] tartozó spektrumokat tipikusan 8-10 hónapnyi folyamatos méréssel vettük fel. Következésképpen a mérőrendszer paramétereiben történő legkisebb javítások is hamar megtérülhetnek, több hónapnyi mérési idő megtakarítását eredményezhetik.

#### 2. A torzított terű elektrosztatikus analizátor

CMA analizátoraink speciálisak, ún. torzított terű CMA-k, amelyet az ATOMKI-ban fejlesztettek ki [4]. A torzított tér azt jelenti, hogy az analizátor szélein meg sem kíséreljük a végtelen koaxiális hengerek közötti térre jellemző logaritmikus potenciál-eloszlás kialakítását, hanem elfogadjuk annak torzulását. Az elektronoknak ebben a "torzított" térben való mozgását természetesen nem lehet analitikusan számolni, csak numerikusan modellezni. A modellszámítások szerint léteznek olyan geometriai elrendezések, amelyekben az analizátor megtartja másodrendű fókuszát, sőt bizonyos paramétereiben jobb is a klasszikus CMA-nál [3, 4].

Az 1. ábrán egy ilyen torzított terű analizátor egy szektorának hosszirányú metszetét ábrázoltuk. (A teljes analizátort az ábrázolt metszetnek a tengely körüli 360 fokos forgatásával kapjuk.) Látható, hogy az analizátort a szélein két, a hengerekhez rögzített fémkorong (gyűrű) zárja le. A hengerek közötti feszültség a két korong közötti néhány mmes résen esik, így a spektrométer szélein kialakuló potenciál-eloszlás valóban igen eltér a szélektől távoli logaritmikus potenciál-eloszlástól. A mért elektronok a két henger közé egy a belső hengeren kialakított résen át jutnak be. A nagy transzmissziójú ráccsal fedett rés természetesen nem futhat végig a belső hengere kerületén, hagyni kell néhány "hidat", amelyek megtartják a belső hengert. A külső hengerre kapcsolt negatív U feszültség az egyik oldali fókuszpontból induló megfelelő E energiájú elektronokat a másik oldali fókuszba gyűjti össze, a számítások szerint a kapcsolatuk:

$$U[\mathbf{V}] = 0,581E[\mathbf{eV}] \tag{1}$$

Az ettől jelentősen eltérő energiájú elektronok nem a fókuszpontba gyűlnek össze, így a detektor előtt lévő blendén nem tudnak áthaladni (vagy már az analizátoron sem). Az elektronokat csatorna elektronsokszorozók (channeltron) detektálják.

A számítások szerint az analizátorunk másodrendű fókusza kb. 43,5°–nál van. Az analizátorba kb. a 40°-46° szögtartományban tudnak az elektronok belépni, e tartomány sin  $\vartheta$ -val súlyozott közepe közel esik a fenti értékhez. Ezen a kb. 6°-os szögtartományon a fókusztávolság változása sokkal kisebb a kölcsönhatási térfogat kb. 2 mm-re becsült átmérőjénél.



1. ábra: Az analizátor egy szektorának hosszirányú sematikus metszete

Az analizátor elvben tetszőleges méretben megépíthető, csak az 1. ábrán megadott méretarányoknak van relevanciája. Az első spektrométerünk két analizátora 32 mm külső átmérőjű belső hengerekkel épült meg (még az 1980-as években), amelyekhez egyenként 182,6 mm fókusztávolság tartozott [5]. Ezt a két analizátoros (tehát dupla) spektrométert egészítettük ki 8-10 éve egy ugyanolyan méretű szimpla analizátorral koincidencia mérések végzése céljából. Ezt a spektrométert, amelyet [6]-ban részletesen leírtunk, azóta sikeresen alkalmazzuk elektronütközéssel létrehozott atomi folyamatok tanulmányozására, a bevezetőben említett [1, 2] cikkek is ezeken a méréseken alapulnak.

## 3. Az új analizátor fokozat szükségessége és megvalósítása

Az elmúlt évek mérései megmutatták, hogy a mérőrendszer leggyengébb pontja az, hogy az egyik analizátor együtemű. Ennek a spektrométernek emiatt az energiafelbontása gyengébb, ami a legtöbb mérésünkben kedvezőtlen. Ennél is súlyosabb probléma azonban az, hogy a szimpla spektrométernek igen magas a beszóródó elektronok miatti háttere. Ezt úgy kell érteni, hogy az együtemű analizátoron nemcsak a megfelelő energiájú, az 1. ábrán berajzolt görbék között haladó elektronok jutnak át, hanem mások is. Például azok a nagyenergiás elektronok, amelyek a külső henger belső felületébe csapódnak és ott éppen a detektor irányába szóródnak (vagy a megfelelő irányba induló szekunder elektront váltanak ki). A tapasztalataink szerint ezek a szórt elektronok zömében nem is a targetgázról, hanem a szórási térfogat más részeiről (elektronágyú szája, gázfúvóka, Faraday-kalitka, stb.) jönnek, tehát a gáztarget elzárása után is megmaradnak. Tekintve, hogy a hasznos jelek száma a gáztarget sűrűségével nyilvánvalóan arányos, a jel/zaj viszonyt leghatékonyabban a targetsűrűség növelésével tudtuk javítani. A magasabb targetsűrűség az egész kamrában magasabb nyomást eredményez, ami viszont az elektronágyú katódjának (de részben az elektronsokszorozónak is) az élettartamát igen károsan befolyásolja. Az eddigi méréseink során a targetsűrűséget a még éppen tolerálhatónak gondolt legmagasabb értéken tartottuk, hogy a beszóródó elektronok hatását minimalizáljuk. Teljesen eltüntetni ezt a hatást azonban nem lehetséges. Ez a szórt elektron háttér megnöveli a véletlen koincidenciák számát, amely miatt a primer áram csökkentése szükséges. Tehát ez a háttér végeredményben az elérhető maximális koincidenciahozamot is csökkenti.

Egy második ütem építése (ehhez az analizátorhoz is) orvosolná a fenti problémákat. Sajnos a vákuumkamrában ez az ütem eredeti méretben már nem fér el (ezért is épült ilyennek), de egy fél (45 % méretű) analizátor ütem még éppen elfér. Ezzel a fejlesztéssel a "bal oldali" spektrométer relatív energiafelbontását (FWHM)) valamelyest javítanánk, miközben az elérhető koincidenciahozam a reményeink szerint még növekedne is. A létrehozandó új spektrométer rajzát, amely tehát a meglevő szimpla analizátor és a megépítendő új "feles méretű" analizátor összeépítésével jön létre, a 2. ábrán láthatjuk.



2. ábra: A meglevő szimpla analizátor és az új "feles méretű" analizátor összeépítésével létrehozott új spektrométer keresztmetszeti rajza

Az új analizátor elemeinek és az összekötő elemeknek a kiviteli tervei a Szerszámgépek Tanszékén készültek és ugyanitt gyártották le őket. Megjegyezzük, hogy a ráccsal fedett rés a belső henger kerületének öthatodán fut, a kerület egyhatodán (4 x 15°) megmaradt "hidak" tartják meg a belső hengert. Ezek a hidak a spektrométert tulajdonképpen 4 db 75°-os szektorra bontják. E szektorok némelyike – a mérési szögek korlátok között tartása érdekében – a rácsok letakarásával a mérésből esetleg ki is iktatható. A 2. ábra jobb oldalán látható még egy függőlegesen álló vékony lemez is. Ez a lemez árnyékolja le a kölcsönhatási térfogatot a külső hengerre kapcsolt negatív feszültségtől. Az ábra ugyanezen oldalán láthatóak az analizátort a dupla spektrométerhez rögzítő távtartók.

A 3. ábrán a meglevő dupla CMA (bal oldalon) és az új CMA (jobb oldalon) torzított terű analizátorokból összeállított spektrométer rendszerünk vázlata látható. A primer elektronnyaláb az analizátorok közös tengelyét derékszögben metszi és ezen a ponton halad át mindkettőre merőlegesen (tehát az ábra síkjára is merőlegesen) a target gáznyaláb is. E kölcsönhatási térfogat közepére esik a szomszédos két analizátor fókuszpontja. Az innen kiinduló az analizátorokon átjutó elektronok (szórt-, ionizációs- vagy Auger-elektronok)

pályáját az ábrába berajzoltuk és feltüntettük az azok detektálását végző csatorna elektronsokszorozókat is.



3. ábra: A teljes koincidencia spektrométer rendszer vázlata

Az ábrán a vastag vonalak a  $\mu$ -metálból készült mágneses árnyékolást jelölik. A régi spektrométer kétrétegű árnyékolása a méréseink szerint a földi mágneses tér kb. 1%-ára (~ $2 \cdot 10^{-7}$  T) csökkenti a tengelyen mérhető mágneses teret. Az új spektrométernek még csak egyszeres árnyékolása van, ezért ebben a mágneses tér kb. 10-szer nagyobb lehet (~ $2 \cdot 10^{-6}$  T). Ez a mágneses tér a 200 eV-es elektronokat kb. 24 m sugarú körpályára kényszeríti, ami egy 30 cm-es úton kb. 2 mm eltérítést jelent. Ez összemérhető az alkalmazott blendék méretével, tehát ronthatja a spektrométer paramétereit. Ezért szükség lenne az új spektrométer második mágneses árnyékolásának megépítésére is, különösen akkor, ha ennél kisebb energiákon is akarunk mérni.

A spektrométerek teljes belső felületét kolloid grafittal vontuk be. A grafit hatékonyan csökkenti a felületi oxidrétegek káros hatásait (azaz valódi ekvipotenciális felületet jelent), másrészt csökkenti a felületekbe becsapódó elektronok által kiváltott szekunder elektronok számát is. A méréshez természetesen nagyvákuumrendszer (p<10<sup>-4</sup>-10<sup>-5</sup> mbar) szükséges, hogy az elektronok a keletkezésük és a detektálásuk között ütközés nélkül repülhessenek. Az elektronágyú és a mérést kiszolgáló elektronika (tápegységek, CFA, TAC, MCA...) lényegében véve konvencionális, a LabWindows mérőprogram a tanszéken készült. A további részleteket pl. [6]-ban foglaltuk össze.

## 4. Mérések az új koincidencia spektrométer rendszerrel

A jelen cikkben bemutatott fejlesztésünk legfőbb célja az eredetileg szimpla spektrométer beszóródó elektronok miatti hátterének csökkentése. Ez a még éppen alkalmazhatónak gondolt legmagasabb targetsűrűség esetén is elérte a 20%-t. Ez a nagy targetsűrűség viszont (a magas kamranyomás miatt) gyorsan elhasználja az elektronágyú katódját (és részben az elektronsokszorozót is). Ha azonban a maximális targetsűrűségnek csak pl. az 1/3 részét állítanánk be, akkor a beszóródó elektronok miatti háttér már meghaladná a hasznos jel nagyságát, ami megengedhetetlen. Az átalakítás utáni első tapasztalatok szerint valóban eltűnt a háttérnek az a része, amely a spektrométer belsejében történő szóródás következménye volt. Megmaradt viszont a gázfúvókán rugalmatlanul szóródott elektronok háttere. Ezek az elektronok megfelelő energiájúak, az 1. ábrán berajzolt görbék között haladva detektálódnak, csak éppen nem a targetgázon szóródnak, hanem a fúvókán. Ez a háttér egy újabb analizátor fokozat beépítésével már nyilvánvalóan nem tüntethető el.

Eltüntethető viszont például a fúvóka kijjebb húzásával, de ekkor nagyon lecsökken a targetsűrűség a fókuszpontban. Megoldás lehet a primer elektronnyaláb tökéletesebb fókuszálása is. Az optimális elektródapotenciálok és fúvókapozíció megtalálása azonban már túlmutat e cikk keretein.

Az átépítés, az új analizátor fokozat másik hatása (mintegy mellékterméke) az energia felbontás javulása. A 4. ábrán az argon  $L_{2,3}$ - $M_{2,3}M_{2,3}$  Auger elektron spektrumát láthatjuk mindhárom spektrométerrel (régi szimpla, dupla és az új másfeles) mérve. Tekintve, hogy ez a spektrum összetett, különálló csúcsokat nem tartalmaz, a felbontás pontos értéke csak a spektrum számítógépes illesztésével határozható meg. A [1]-ben leírt illesztés eredménye szerint a félértékszélességek (FWHM: full-width-at-half-maximum) rendre 0,55%, 1,1% és 0,78%. Ez utóbbi érték, összhangban a várakozásainkkal, közel van a dupla és szimpla spektrométerek félértékszélességeinek számtani közepéhez.



4. ábra: Az argon L<sub>2,3</sub>-M<sub>2,3</sub>M<sub>2,3</sub> Auger elektron spektruma a régi szimpla (üres négyzet), a dupla (tele kör) és az új (másfeles) spektrométerrel (tele négyzet) mérve. A spektrumot alkotó csúcsok jelei is láthatók az ábrán a megfelelő névleges energiáknál.

A legutóbbi és a tervezett új méréseink azonban nem egyszerű energiaspektrum mérések, hanem annál sokkal bonyolultabb koincidencia mérések. Ezek egyik csoportjában a végállapoti energia  $(E_F)$  rögzítése az alapvető fontosságú. Ezekben a kísérletekben a kicserélődési interferenciát vizsgáljuk az argon elektronütközéssel keltett rezonáns Auger-állapotaiban. Ez két olyan nem átfedő rezonancia között következhet be, amelyek elektronemisszióval ugyanabba a végállapotba bomlanak. Hosszú mérések során vált világossá, hogy a mi kísérleti körülményeink között argon targeten a  $2p^{-1}({}^{2}P_{1/2})4p$  és a  $2p^{-1}({}^{2}P_{3/2})4p$  rezonanciákhoz kötődő interferencia megfigyelésére lehet a legnagyobb esélyünk. Az interferencia feltétel megköveteli, hogy az egyik reakció csatornában szórt elektronnak (e<sup>-</sup><sub>sc</sub>) az energiája (és spinje) megegyezzen a másik csatornában kibocsájtott Auger-elektron (e<sup>-</sup><sub>Au</sub>) energiájával (és

spinjével): ebben az esetben az  $(e_{sc'},e_{Au'})$  és  $(e_{sc''},e_{Au''})$  elektronpárok megkülönböztethetetlenek. Ilyen állapot-állapot interferencia csak egyetlen primer elektron energián lehetséges. Az interferenciaképes folyamatok és az energiák (eV-ben):

$$e_{p}^{*}(456,9) + Ar^{1}S_{0}(0) \rightarrow \\ \rightarrow e_{sc}^{*}(208,7) + Ar^{*}2p^{-1}(^{2}P_{1/2})4p(248,2) \rightarrow Ar^{+*}3p^{-2}(^{1}D_{2})4p(^{2}P)(37,3) + e_{sc}^{*}(208,7) + e_{Au}^{*}(210,9) \\ \stackrel{\text{és a}}{\rightarrow} e_{sc}^{*}(210,9) + Ar^{*}2p^{-1}(^{2}P_{3/2})4p(246,0) \rightarrow Ar^{+*}3p^{-2}(^{1}D_{2})4p(^{2}P)(37,3) + e_{sc}^{*}(210,9) + e_{Au}^{*}(208,7)$$

Az elektronpárokat a két elektronspektrométerrel koincidenciában mérjük. Kísérleti oldalról azt találtuk a leghatékonyabb módszernek, ha olyan méréseket végzünk, amelyben egyidejűleg mindkét spektrométer energiáját léptetjük, de ellentétes irányban, azaz a koincidenciában mért két elektron energiájának az összegét állandó értéken tartjuk. Az ilyen méréseket konstans ionállapot (CIS) koincidencia spektroszkópiának nevezik [7], analóg módon a nem-koincidencia fotoionizációs mérésekhez, ahol a fotoelektron vagy a rezonáns Auger-elektron detektálási energiáját együtt léptetik a beeső foton energiával.



5. ábra. A kritikus primer energián felvett koincidencia CIS spektrumok: a régi (tele kör), illetve az új spektrométerrel (üres négyzet) felvéve (alul a régi dupla, felül a régi szimpla ill. új "másfeles" spektrométerek energiaskálája van).

Az 5. ábrán összevetjük a régi illetve az új spektrométerrel a kritikus primer energián felvett koincidencia CIS spektrumokat. Bár az új spektrométerrel felvett spektrum statisztikája még nem kielégítő, az már most is látszik, hogy a rendszer energia felbontása javult egy kicsit. Az ábrából más, az esetleges interferenciával kapcsolatos következtetések levonása nem tárgya a jelen cikkünknek.

# 5. Összefoglalás

Összefoglalásként megállapítható, hogy az új analizátor fokozat megépítése és annak beillesztése a koincidencia elektronspektrométer rendszerbe sikeres volt. Az új "másfeles" spektrométernek, ahogy az várható is volt:

- a) jelentősen lecsökkent a beszóródó elektronok miatti háttere,
- b) az energia felbontása kb. 30%-kal javult,
- c) a transzmissziós hatásfoka valamelyest csökkent ugyan, de ezt bőven ellensúlyozza a beszóródó elektronok csökkenő háttere miatti jel/zaj viszony növekedése.

Kétségtelen, hogy az a) pontbeli változás a legfontosabb. Ha a detektált elektronok szinte kizárólag a target gázból erednek (szóródnak vagy kibocsájtódnak), akkor a mérések kisebb targetsűrűségen is végrehajthatók. (Az azonos hozamhoz persze arányosan növelni kell a primer elektronáramot.) A kisebb targetsűrűségből kisebb vákuumkamra háttérnyomás következik, ami igen jelentősen növelheti az elektronágyú katódjának élettartamát.

## 6. Köszönetnyilvánítás

A kutató munka a TÁMOP-4.2.2.B-10/1-2010-0008 jelű projekt részeként – az Új Magyarország Fejlesztési Terv keretében – az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg.

#### 7. Irodalom

- [1] Paripás, B., Palásthy, B.: (e,2e) and (e,3-1e) coincidence experiments for studying the *PCI effect of low energy ionizing electrons in the Auger process of Ar*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 185 (2012) 602.
- [2] Paripás, B., Palásthy, B., Zitnik, M.: Experimental (e,2e) study of exchange interferences in the resonant Auger decay of Ar induced by electron impact, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 189 (2013) 65.
- [3] Varga, D., Kövér, A., Kövér L., Redler, L.: A Distorted Field Cylindrical Mirror Electron Spectrometer I. Calculation of the Analyzer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A238 (1985) 393.
- [4] Kövér, Á., Varga, D., Csernyi, I., Szmola, E., Mórik, Gy., Gulyás, L., Tőkési, K.: A Distorted Field Cylindrical Mirror Electron Spectrometer II. Performances and application for studying ion-atom collisions, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A373 (1996) 51.
- [5] Paripás, B., Mariscsák, I.: A Cylindrical Mirror Electron Spectrometer Built for Studying Electron-Atom Collisions, Publications of University of Miskolc, Section D: Natural Sciences, Vol. 38. Physics, (1998) 3.
- [6] Paripás, B., Palásthy, B.: Coincidence electron spectrometer for studying electron-atom collisions, Radiation Physics and Chemistry 76. (2007) 565.
- [7] Zitnik, M., Bucar, K., Mihelic, A., Lablanquie, P., Penent, F., Paladoux, J., Andric, L., Bolognesi, P., Avaldi, L.: *Inter- and intrachannel exchange interference in photoinduced Auger decay: The Kr M<sub>4,5</sub>–N<sub>1</sub>N<sub>23</sub> and Xe N<sub>4,5</sub>–O<sub>1</sub>O<sub>23</sub> cases, Phys. Rev. A 87. (2013) 013436.*