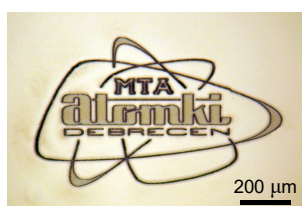


MTA doktori értekezés

Mikromegmunkálás és ionnyaláb-analízis pásztázó ionszondákkal

Rajta István



Atommagkutató Intézet
MTA Kiváló Kutatóhely
Debrecen
2020

A címlapon látható fényképen az Atomki logó protonnyalábos írással készített miniatúr verziója látható.

Ezt a logót az Atomkiban készítettem a pásztázó ionmikroszkopon szilícium hátlapon lévő SU-8 rezisztanyagból (a polimer réteg vastagsága $\sim 30 \mu\text{m}$). Az ábra felbontása 1024 pixel volt, a nyaláb mérete $\sim 1,5 \mu\text{m}$, a pásztázott terület 1 mm^2 . Az előhívás során a besugárzott terület megmaradt, a besugárzatlan lemaródott. Így a logó rajza a síkból kiemelkedik.

Tartalomjegyzék

Bevezetés	1
1. Mikroszondától a nanoszondáig	3
1.1. Szingapúri nanoszonda	4
1.2. Nehézion-mikroszonda Řežben	8
1.3. Atomki Tandetron	11
1.4. Atomki nanoszonda	17
2. Ionnyaláb-analitika	24
2.1. Kétdetektoros PIXE módszer	24
2.2. A mikro-DIGE módszer megvalósítása	28
2.3. IRMM standard	32
2.4. Nanokapillárisok irányeloszlása	35
3. PBW – metodika és rezisztanyagok fejlesztése	43
3.1. A protonnyalábos írás alapjai	43
3.2. Hatékony töltésmonitorozás	49
3.3. Nagy felbontású fém mikrobelyegzők	53
3.4. PBW nyalábméret-mérő standardok	56
3.5. CR-39 nyomdetektor PBW rezisztként	59
3.5.1. Újfajta rezisztanyagok: Foturan, CR-39	59
3.5.2. Optimális fluens meghatározása a CR-39 esetén	63
3.5.3. A CR-39 érzékenységének növelése CO ₂ kezeléssel	67
4. PBW – alkalmazások	70
4.1. Felhasznált anyagok és besugárzási paraméterek	70
4.2. Mikrooptikai alkalmazások	72
4.2.1. Passzív hullámvezető PMMA-ban	72
4.2.2. PMMA törésmutató változása protonbesugárzás hatására	76
4.2.3. PDMS törésmutató változása protonbesugárzás hatására	79
4.2.4. PDMS tömörödés protonbesugárzás hatására	82
4.2.5. PDMS mikrolencsék készítése tömörödés segítségével	86
4.2.6. PDMS tömörödés és mikrolencsék készítése nitrogénbesugárzással	89
4.3. Mikrofluidikai alkalmazások	92
4.3.1. Szilícium mikroturbina	92
4.3.2. Döntött oszlopokon alapuló mikrofluidikai eszköz cirkuláló ráksejtek kiszűrésére	96
Az eredmények hasznosítása	100
Összefoglalás és kitekintés	101
Köszönetnyilvánítás	104
Irodalom	105
A tézispontokhoz kapcsolódó saját közlemények	109
Rövidítések jegyzéke	113

Bevezetés

*„Fiam, ha majd egyszer igazán tud mérni,
maga fogja elkészíteni a műszert!”
(Szalay Sándor)*

Napjainkban a nanotechnológia a tudományos kutatás és a gyakorlati alkalmazások fontos területévé vált. A legalább egyik dimenziójukban nanométeres nagyságrendbe eső szerkezetek (mikro- és nanostruktúrák) létrehozására és analitikájára egyik lehetséges módszer a MeV energiájú ionnyalábok használata. Az ionnyaláb-analitikai (IBA) módszerek lehetőséget nyújtanak a mélységi nanométeres felbontású analitikára, vékony rétegek elemzésére. Laterálisan is van lehetőség a nanométeres tartomány vizsgálatára, módosítására: ehhez az ionnyalábot nanométeres nagyságrendűre kell fókuszálni.

A pásztázó ionmikroszondák és nanoszondák olyan különleges eszközök, amelyek számos multidiszciplináris alkalmazásra használhatók. A MeV energiájú ionoknak az a képessége, hogy az anyagba a laterális nyalábméret minimális kiszélesedésével jelentős mélységbe behatoljanak, fontos következményekkel bír számos orvosi-biológiai, mérnöki és tudományos területen, pl. ionnyaláb-analitika, ionmikroszkópia, és nagy oldalarányú struktúrák mikro- és nanomegmunkálása polimerekben vagy félvezetőkben. A dolgozatban bemutatott tudományos eredményeim a fent felsorolt területek közül többet is érintenek.

Debrecenben az Atomki 5 MV-os Van de Graaff-gyorsítóján 1993-ban kezdődött el a mikroszonda projekt egy OTKA műszerközpont-pályázat finanszírozásával. Ebben a munkában első éves PhD-ösztöndíjas hallgatóként kapcsolódtam be, és egy éven belül már elértük az 1 μm -es nyalábméretet. Ebből az eredményből 1996-ban jelent meg az első referált tudományos folyóiratcikk [S1]. A PhD-munkámhoz néhány további cikk kapcsolódott a mikroszonda alkalmazásaiból, és az utánam következő doktoranduszok a mikroszonda felhasználásával még 10 PhD disszertációt védtek meg. Többségük munkáját tapasztalataimmal, tanácsaimmal segítettem, majd magam is témavezető lettem. Külföldi posztdoktori tanulmányutak során részt vettem a Szingapúri Egyetemen a nanoszonda fejlesztésben, és a protonnyalábos mikromegmunkálás kifejlesztésében is.

A nyaláb méretének a mikronos tartományból a nanométeres nagyságrendűre való csökkentése, vagyis a nanoszonda megvalósítása leginkább a mikroszonda alkalmazásával szerzett tapasztalatok ismeretében, annak továbbfejlesztésével valósítható meg. Mindehhez szükség volt egy új részecskegyorsító beszerzésére. Továbbá a gyorsító által szolgáltatott ionok választékának bővítése szélesíti a tudományos alkalmazási lehetőségeket. A nanoszondákban az ionnyaláb mérete a látható fény hullámhossza által meghatározott diffrakciós határ alatt van, ami egyedi alkalmazási lehetőségeket teremt a nanotechnológiában. Például ezzel a technológiával a sejtbiológiában szerkezeti és fluoreszcens mikroszkópiával egész sejtek vizsgálhatók nanométeres nagyságrendű feloldással; vagy protonnyalábos írással nagy oldalarányú nanostruktúrák készíthetők különböző anyagokban. Munkám távlati célja ilyen kutatási irányok lehetővé tétele, ehhez a Tandetron gyorsító melletti világszínvonalú kutatási környezet létrehozása volt.

Az értekezésben ismertetett munka többretű. Az *infrastruktúra fejlesztések* elengedhetetlenül szükségesek a későbbi tudományos munkákhoz. A külföldi (szingapúri nanoszonda, řeži nehézion-mikroszonda) tapasztalatok jelentős mértékben hozzájárultak a hazai fejlesztésekhez. Így valósult meg a Tandetron Laboratórium és benne az Atomki nanoszonda, ami nemcsak protonokra, hanem nehézionok fókuszálására is alkalmas, így számos új felhasználási lehetőség nyílik meg. Természetesen maga a Tandetron gyorsító több más célra is használható (pl. a magfizikai és nukleáris asztrofizikai alapkutatóban, a molekulafizikában a H2020 EUROPLANET projektben, az alkalmazott kutatásban pedig a H2020 IPERION-HS projektben).

Munkám során különböző ionnyaláb-analitikai (IBA) módszereket használtam, így a Rutherford-visszaszórás spektrometria (Rutherford Backscattering Spectrometry, RBS), a protonokkal indukált röntgenemisszió (Proton Induced X-ray Emission, PIXE) és a protonokkal vagy deutronokkal indukált gamma-emisszió (Proton / Deutron Induced Gamma-ray Emission, PIGE / DIGE) módszereket. Míg a fenti módszerek makro- és mikronyalábokkal is használhatók, a pásztázó transzmissziós ionmikroszkópia (Scanning Transmission Ion Microscopy, STIM) kifejezetten mikronyalábos technika. Értekezésem következő nagy fejezete a pásztázó ionmikroszondán alkalmazott *analitikai módszerekhez* kapcsolódó néhány fejlesztés és alkalmazás bemutatása: két-detektoros PIXE módszer, mikro-DIGE mérőkamra, illetve a MeV energiájú ionnyalábok méretének meghatározására szolgáló standard (IRMM standard) validálása és a nanokapillárisok irányeloszlásának tanulmányozása.

A protonnyalábos mikromegmunkálás, más néven protonnyalábos írás (P-beam writing, PBW) a direkt írásos litográfiás módszerek egyike, amelynek a meghonosítása az Atomki mikroszondáján az elmúlt mintegy 15 évben új lehetőségeket nyitott meg. A direkt írásos módszerek prototípusok vagy maszkok készítésére és javítására használhatók, míg a maszkot használó, levilágítással működő litográfiás módszerek alkalmasak a tömegtermelésre, így széles körben elterjedtek az iparban. A protonok által roncsolt térfogatban létrehozott látens kép kémiai eljárással előhívható, így 3-dimenziós mikrostruktúrák hozhatók létre. A *mikromegmunkálás* lett az IBA után a mikroszonda második széleskörű felhasználási területe. Itt is végeztem módszerfejlesztéseket, majd alkalmazásokat. Ezek a fejezetek jelentik az értekezés gerincét, mert a PhD megvédése óta eltelt több, mint 20 év alatt ebben a témában született a legtöbb tudományos publikációm is.

A munka kísérleti jellegéből adódóan minden esetben egy csoport munkájából születtek az eredmények. A tézispontokhoz felhasznált minden cikk esetében azokban meghatározó szerepem volt.

1. Mikroszondától a nanoszondáig

Kivonat

A részecskegyorsítók a legtöbb esetben sokfelhasználós, multifunkciós berendezések, így van ez az Atomki gyorsítóinál is. Emellett a mikro- és nanoszondák az alapjai mind az ionnyaláb-analitikának [1], [2], [3], [4], mind a protonnyalábos írásnak [5], sőt az ion-felület kölcsönhatások vizsgálatának is [6]. Ezért annak érdekében, hogy világszínvonalú eredményeket érjünk el, először biztosítanunk kell, hogy világszínvonalú kísérleti eszközökön dolgozhassunk. A 60-as években erre a hazai fejlesztésű gyorsítók építése volt az egyetlen lehetőség. A 90-es években már sikerült pályázati forrásokból egy mikroszonda beszerzése, amelynek megépítése, az 1971-ben átadott 5 MV-os Van de Graaff-gyorsítóhoz való illesztése és az első tudományos alkalmazásai volt a PhD témám [S1]. Ez a feladat nem volt azonos egy kulcsrakész berendezés bekapcsolásával, hanem több ember általi komoly fejlesztőmunkát is igényelt.

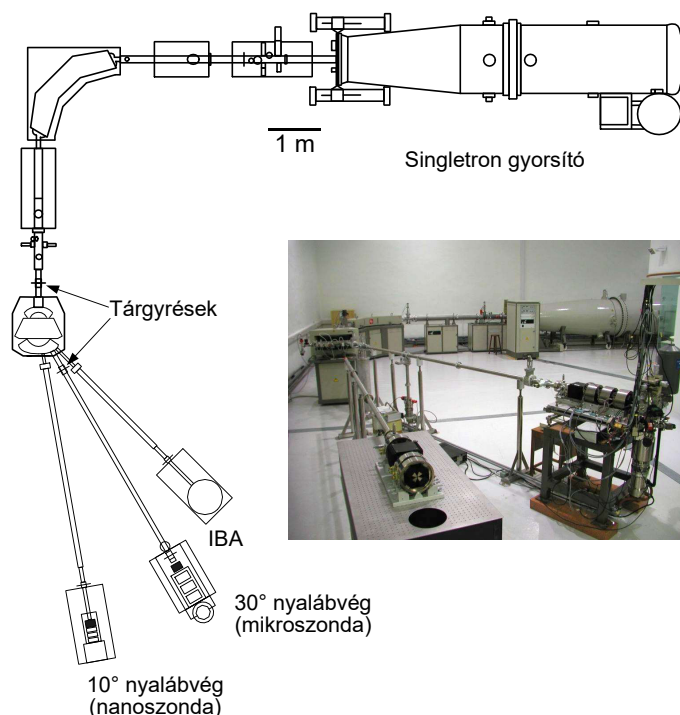
Posztdoktori tanulmányaim során Oxfordban és Szingapúrban is fő céljaim között szerepelt a mikro- és nanoszondák továbbfejlesztése. Ebben a fejezetben a Szingapúri Egyetemen a Centre for Ion Beam Applications (CIBA) kutatócsoportban elért eredményeimről írok, ahol nanoszonda megvalósításában meghatározó szerepem volt [A1].

Később, a mikro- és nanoszonda-építési tapasztalataimat ismerő cseh kollégák felkérésére irányító szerepet vállaltam a Cseh Tudományos Akadémia Magfizikai Intézetében, Řežben az új Tandetron gyorsítójukra telepített mikroszonda kvadrupól triplétt lencséinek finomhangolásában. Továbbá a lehetőségek ismeretében felmerült ötletem alapján nemcsak protonokat, hanem szén-, oxigén- és szilíciumionokat is mikronos nyalábméretre fókuszáltunk [A2]. Az ott szerzett nehézionos tapasztalatokat itthon is fel tudom használni. Az új Tandetron gyorsítónkon megvan a lehetőségünk nehéz ionokkal mikro- és nanonyaláb fókuszálására és ezek alkalmazásaira is.

Az utóbbi néhány évben pedig előbb az MTA infrastruktúra-pályázatok keretében lehetőségünk volt egy gyári építésű, új gyorsító beszerzésére [A3], amelyet már kezdettől fogva úgy terveztünk, hogy lehetővé váljon a nanoszonda hazai megvalósítása [A4]. A korlátozott finanszírozási lehetőségek miatt a komplex projektet több részre kellett szétbontanunk, így szakaszonként szereztük be az egymáshoz kapcsolódó alkatrészeket. Ehhez adódott hozzá végül a GINOP-pályázati forrásból a fejlesztés befejezésére elegendő forrás, így most az eredetileg 2012-ben megálmodott világszínvonalú Tandetron Laboratórium üzemelhet a következő évtizedekben kutató generációkat kiszolgálva.

1.1. Szingapúri nanoszonda

A Szingapúri Egyetemen (National University of Singapore, NUS) működő nukleáris mikroszkópia kutatóközpont (Research Centre for Nuclear Microscopy, RCNM¹) lehetőségei lényegesen kibővültek a három új nyalábcsatornával, amelyek a High Voltage Engineering Europa B.V. cég által gyártott új 3,5 MV-os nagy fényességű Singletron™ gyorsítóhoz kapcsolódnak. A nyalábcsatornákat széles körben alkalmazzák különböző tudományterületeken, pl. biológiai és anyagtudományi minták nukleáris mikroszkópiái vizsgálatára vagy ionnyaláb-analízisére, valamint mikrostruktúrák létrehozására PBW módszerrel szintén sokféle alkalmazási céllal, pl. mikrofluidika, mikrooptika stb.

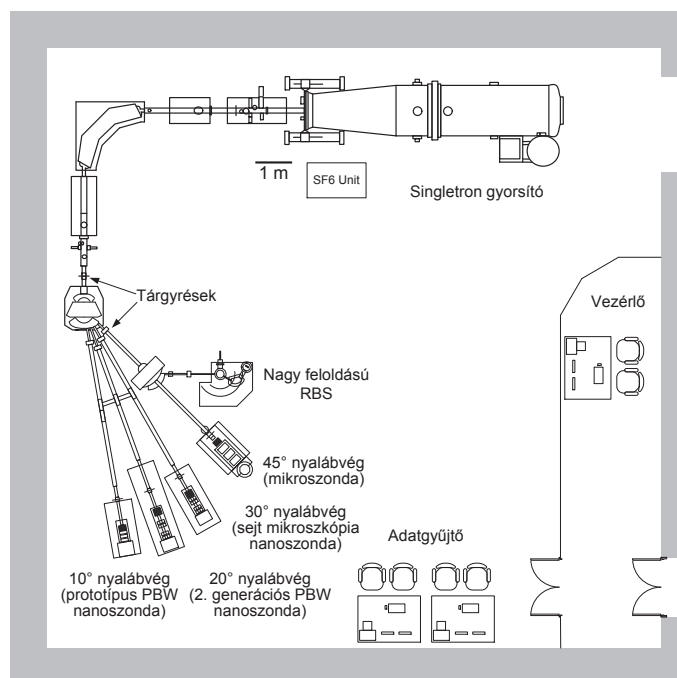


1. ábra. A Szingapúri Egyetem gyorsítólaboratóriuma 2001-ben.

A laboratórium a 2001. évi állapotában az 1. ábrán látható. A gyorsító a jobb felső sarokban, a nyalábcsatornák az előtérben balról jobbra: prototípus nanoszonda nyalábvég (10°), nukleáris mikroszkonda (30°), és egy IBA nyalábvég (45°) (ezt a fényképet még az IBA nyalábvég megépítése előtt készítettem).

Jelenleg már öt különböző nyalábvég működik a gyorsító mellett (ld. 2. és 3. ábrák). A nukleáris mikroszkópia nyalábvég átköltözött a 45°-os nyalábcsatornára, ahol egy második kapcsolómágnessel ez vagy a nagyfeloldású RBS kamra használható. A prototípus nanoszonda nyalábvég (10°) mellett a 2. generációs PBW nyalábvég (20°), és egy biológiai minták mikroszkópiájára alkalmas nyalábvég (30°) is működik. A két utóbbi nanoszonda ionoptikája a prototípus nanoszondáéval azonos, a

¹ Megjegyzés: A csoport nevét azóta megváltoztatták, jelenlegi nevük Ionnyaláb Alkalmazások Központja (Centre for Ion Beam Applications, CIBA).



2. ábra. A Szingapúri Egyetem gyorsítólaboratóriuma 2017-ben (alaprész).



3. ábra. A Szingapúri Egyetem gyorsítólaboratóriuma 2017-ben (fotó).

mérőkamrák a feladatnak megfelelően különbözőek. Mivel a kapcsolómágnés jobb oldali portjait nem tudják használni az ott lévő fal miatt², ennyi igény már „kinőtte” a laboratóriumot.

A tárgyrés a kapcsolómágnés előtt helyezkedik el, így biztosítva az elegendően hosszú tárgytávolságot. Ezen kívül egy másik tárgyrés is található a kapcsolómágnés után, így különböző alkalmazásokhoz ki lehet választani melyik tárgyrés használata célszerűbb. Protonok használata esetén a kapcsolómágnés előtti rést használtuk, mert ez biztosítja a hosszabb tárgytávolságot, így jobb kicsinyítési tényezőt, ezzel kisebb nyalábméretet. Hélium esetén viszont az első tárgyrést teljesen kinyitottuk

² Megjegyzés: Az Atomki Tandetron Laboratórium tervezésénél felhasználtuk ezeket a tapasztalatokat (ld. a 13. ábrát később).

1 MIKROSZONDÁTÓL A NANOSZONDÁIG

1. táblázat. *A nukleáris mikroszkonda ionoptikai paramétereit.*

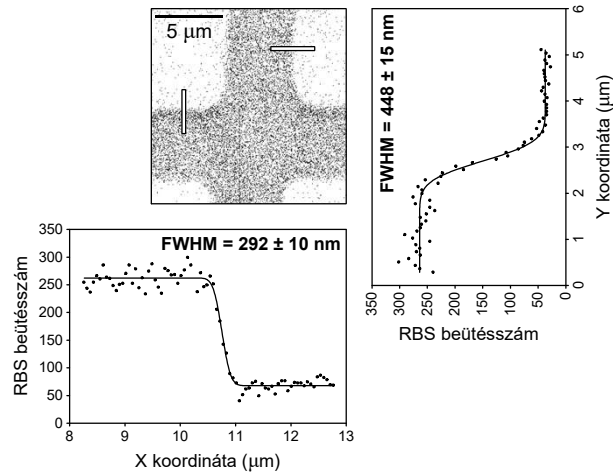
Protonenergia, nyalábáram	2 MeV, 50 pA
Tárgytávolság (tárgyrés – lencse)	6,4 m
Munkatávolság (lencse – nyalábfókusz)	16 cm
D_x, D_y kicsinyítési tényező	88, -24
Tárgyrés méret A_0 ($\Delta x, \Delta y$)	$25 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$
Kollimátorrés méret A_a ($\Delta x, \Delta y$)	$300 \mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$
Nyalábfényesség ($B = I / A_0 A_a E/d^2$)	$74 \text{ pA} / \mu\text{m}^2 \text{ mrad}^2 \text{ MeV}$
Lencse előtti divergencia (félnyílásszög) (θ, ϕ)	0,023 mrad, 0,023 mrad
Kromatikus aberrációs együtthatók	
($x/\theta\delta$)	-325 $\mu\text{m} / \text{mrad} / \%$ impulzus szórás
($y/\phi\delta$)	833 $\mu\text{m} / \text{mrad} / \%$ impulzus szórás
Szférikus aberrációs együtthatók	
(x/θ^3)	373 $\mu\text{m} / \text{mrad}^3$
($x/\theta\phi^2$)	188 $\mu\text{m} / \text{mrad}^3$
(y/ϕ^3)	-2004 $\mu\text{m} / \text{mrad}^3$
($y/\theta^2\phi$)	-669 $\mu\text{m} / \text{mrad}^3$
Számított geometriai nyalábméret (x,y)	280 nm \times 420 nm

2. táblázat. *A PBW nyalábvég ionoptikai paramétereit.*

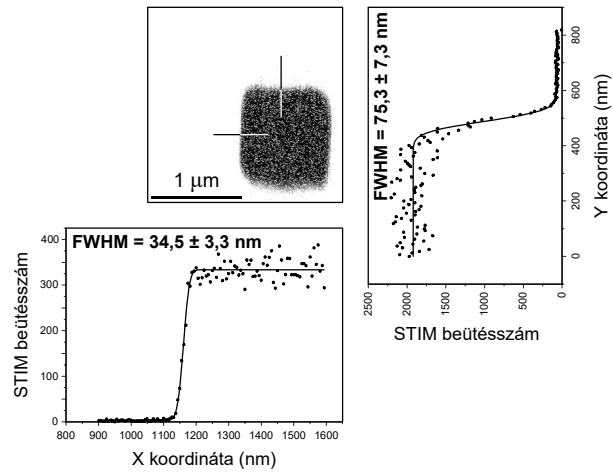
Protonenergia, nyalábáram	2 MeV, H_2^+ , 10.000 proton/s
Tárgytávolság (tárgyrés – lencse)	6,4 m
Munkatávolság (lencse – nyalábfókusz)	7 cm
D_x, D_y kicsinyítési tényező	228, -60
Tárgyrés méret A_0 ($\Delta x, \Delta y$)	$2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ (névleges)
Kollimátorrés méret A_a ($\Delta x, \Delta y$)	$10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ (névleges)
Nyalábfényesség ($B = I / A_0 A_a E/d^2$)	$74 \text{ pA} / \mu\text{m}^2 \text{ mrad}^2 \text{ MeV}$
Lencse előtti divergencia (félnyílásszög) (θ, ϕ)	0,001 mrad, 0,001 mrad (névleges)
Kromatikus aberrációs együtthatók	
($x/\theta\delta$)	-385 $\mu\text{m} / \text{mrad} / \%$ impulzus szórás
($y/\phi\delta$)	984 $\mu\text{m} / \text{mrad} / \%$ impulzus szórás
Szférikus aberrációs együtthatók	
(x/θ^3)	2692 $\mu\text{m} / \text{mrad}^3$
($x/\theta\phi^2$)	1160 $\mu\text{m} / \text{mrad}^3$
(y/ϕ^3)	-13.620 $\mu\text{m} / \text{mrad}^3$
($y/\theta^2\phi$)	-4447 $\mu\text{m} / \text{mrad}^3$
Számított geometriai nyalábméret (x,y)	10 nm \times 40 nm

(a tárgyrést védő apertúra mögé visszahúзва), így megvédve a nyaláb roncsoló hatásától, és ekkor a kapcsolómágnés mögötti tárgyrést használtuk. A hélium ugyanis sokkal nagyobb mértékben roncsolja (blistering [7]) a réspofák wolfram-karbid anyagát, mint a proton. A roncsolt állapotú réspofák viszont a kis nyalábméret elérését ellehetetlenítik.

A mikroszkonda nyaláboptikai paramétereit a PRAM [8] szoftverrel modellezttem. Az OM50 típusú kvadrupól lencsék triplétt konfigurációban működnek. A számításokat protonnyalábra, és a kapcsolómágnés előtti tárgyrésre végeztem el. Az



4. ábra. *Ni* rács RBS térképe (50 pA), és az X,Y pásztázási vonalak helye. A függőleges és a vízszintes vonalak menti pásztázások hozamainak illesztése.



5. ábra. $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ méretű lyukat tartalmazó röntgen maszk „on-axis” STIM térképe (10 000 ion/s), és az X,Y pásztázási vonalak helye. A függőleges és a vízszintes vonalak menti pásztázások hozamainak illesztése.

eredmények az 1. táblázatban és a 4. ábrán láthatók. A táblázatban feltüntetett nyalábparaméterekkel és a méréshez használt házilag készített ráccsal [C3] (ld. 43 (b) ábra) mért nyalábméret $292 \text{ nm} \times 448 \text{ nm}$ 50 pA áramú 2 MeV energiájú protonnyalábbal. Ezeket a méréseket RBS technikával végeztük két egymásra merőleges (X és Y) vonal mentén pásztázva a nyalábot. A vonalprofilokkal együtt a kétdimenziós térképet is ábrázoltam. A vonalak menti pásztázásból kapott hozamokat hibafüggvénnyel illesztettem, ezekből határoztam meg a nyaláb méretét. A mért értékek csak kissé haladják meg a számított értékeket, ami azt jelenti, hogy a méréshez használt standard minta megfelel a célra, és a lencsehibák hatásai elhanyagolhatók.

A nanoszonda nyalábvégén – amit dedikáltan protonnyalábos mikromegmunkálás céljára terveztünk és házilag építettünk, és az első ilyen volt a világon – az új

generációs kompakt OM52 kvadrupól mágneses lencsét használtuk, szintén triplétt konfigurációban [9]. A lehető legnagyobb mértékű kicsinyítési tényező elérése érdekében a kapcsolómágnes előtti tárgyrest alkalmaztuk. A céltárgy vákuumkamrában Burleigh Inchworm 3D XYZ mintamozgató manipulátor található, melynek lépésköze 20 nm. A nyaláboptikai paramétereket a PRAM [8] szoftverrel modelleztem, az eredmények a 2. táblázatban láthatók. Ez a nyalábsatorna lényegesen nagyobb kicsinyítési tényezővel rendelkezik a mikroszondánál, ami a kompakt lencséknek és a rövidebb munkatávolságnak köszönhető. A nagyobb szférikus aberrációs együtt-hatók, a megnövelt X és Y kicsinyítési tényezők következményei, megkövetelik a nyalábdivergencia kis értéken tartását.

A kvadrupól mágneses lencsék beállítására a gyári ajánlás helyett egy sokkal pontosabb finomhangolási eljárást dolgoztam ki. Ehhez a lencsék tekercseinek gerjesztőáramát a fókuszáláshoz szükséges optimális értéknél lényegesen nagyobbra állítottam be (túlfókuszálás), így a lencsék pozíciójának az ideális tengelytől való eltérése jelentősen felnagyítva jelenik meg a nyaláb képén.

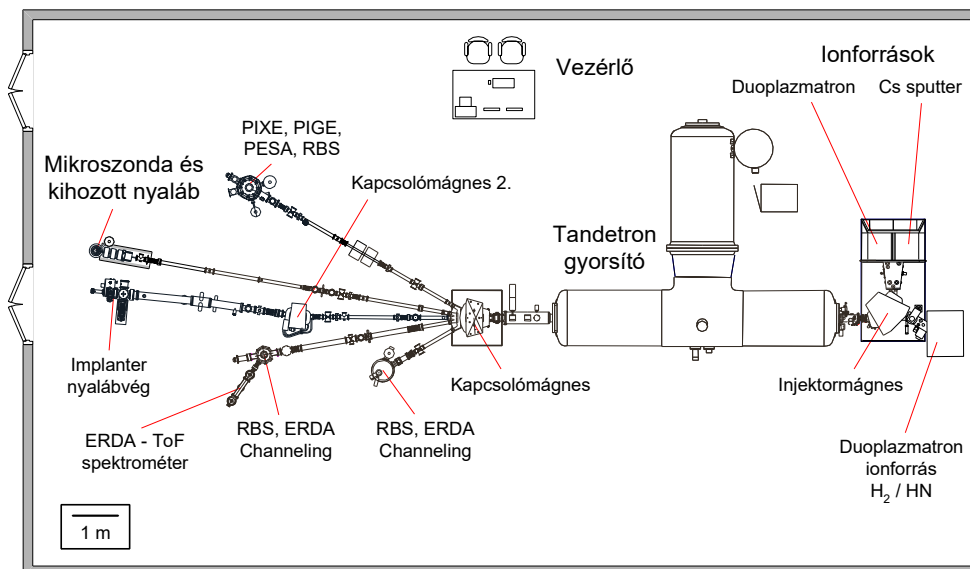
A mért nyalábméret $35 \text{ nm} \times 75 \text{ nm}$ 10 000 proton/s áramú 2 MeV energiájú protonnyalábbal (ld. 5. ábra). Az így mért érték a valós nyalábméretet túlbecsüli, mert a céltárgy standard minta széleinek profilját nem vettük figyelembe (mivel nem ismert ez az érték). A méréseket STIM technikával végeztük két egymásra merőleges (X és Y) vonal mentén pásztázva a nyalábot. A vonalprofilokkal együtt a kétdimenziós térképet is ábrázoltam. A 2 MeV energiájú nyalábból a proton helyett a H_2^+ molekulanyalábot választottuk, mert így a tárgyreszopók szélein szóródó molekulaiionok felbomlanak két protonra, amelyek energiája kisebb, így a kapcsolómágnes után nem érik el a céltárgyat.

Eljárást dolgoztam ki a pásztázó ionnanoszondák kvadrupól mágneses lencséinek finomhangolására. Ezáltal a Szingapúri Egyetemen a világon elsőként sikerült $35 \text{ nm} \times 75 \text{ nm}$ nyalábméretet elérni 10 000 proton/s ionáram mellett. Emellett a már meglévő mikroszonda paramétereinek optimalizálásával $290 \text{ nm} \times 450 \text{ nm}$ nyalábméretet értem el 50 pA árammal 2 MeV protonokkal. Mindkét rendszer tekintetében világrekord nyalábméreteket jelentettünk be [A1].

1.2. Nehézion-mikroszonda Řežben

A mikro- és nanoszonda-építési tapasztalataimat ismerő cseh kollégák felkérésére irányító szerepet vállaltam Řež-ben a Cseh Tudományos Akadémia Magfizikai Intézetében az új Tandetron gyorsítójukra telepített mikroszonda kvadrupól triplétt lencséinek finomhangolásában, ezzel elérve a specifikált $1 \mu\text{m}$ -es nyalábméretet. Továbbá a lehetőségek ismeretében felmerült ötletem alapján nemcsak protonokat, hanem szén-, oxigén- és szilíciumionokat is mikronos nyalábméretre fókuszáltunk.

A gyorsítóhoz két duoplazmatron (model 358) ionforrás és egy cézium sputter (model 860A) ionforrás csatlakozik. Az egyik duoplazmatron a gyorsító és az épület külső fala között csak nagyon szűken fért el (ld. a 6. ábra jobb szélén). A duoplazmatron ionforrásból egy nagyságrenddel nagyobb fényességű protonnyaláb



6. ábra. A Tandetron gyorsító és a hozzá kapcsolódó nyalábcatornák sematikus ábrája. Problémák: 1. a második duoplazmatron ionforrás túl közel van a falhoz (karbantartás során nehéz hozzáférni), 2. a mikroszkopos nyaláb túl közel van az ajtóhoz (nem lehetett nagyobb tárgytávolságot tervezni), 3. a vezérlő a gyorsítóval és a nyalábvégekkel egy légtérben van (zajban nem kellemes dolgozni).

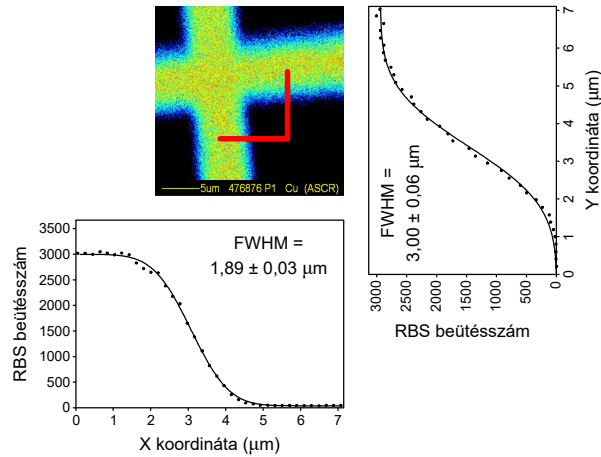
nyerhető, mint a cézium sputter forrásból. Ezért mikronyalábos alkalmazásokhoz a duoplazmatron használata preferált. A fényesség mért értéke $2 \text{ MeV protonnyalábra } 3 \text{ pA mrad}^{-2} \mu\text{m}^{-2} \text{ MeV}^{-1}$.

Az 5 nyalábcatorna közül az egyik nyalábvégén van telepítve a pásztázó ion-mikroszkopos nyaláb, amely mikronos és szubmikronos nyalábméreteket biztosít anyagtudományi, ionnyaláb-analitkai célokra elsősorban a következő analitikai módszerekkel: PIXE, PIGE, RBS, STIM, illetve protonnyalábos íráshoz.

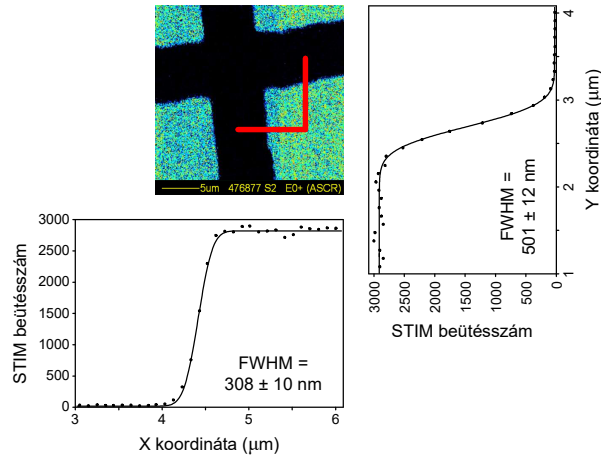
A mikroszkopos nyaláb nagy előnye a 3D struktúrák készítésének lehetősége nemcsak könnyű ionokkal polimerekben, hanem nehéz ionokkal is különböző anyagokban, pl. üvegekben, kerámiákban stb. A fókuszáló rendszer lehetővé teszi a maximum 11 MeV amu/q^2 mágneses merevségű ionok fókuszálását. A rendszer tipikus feloldása 2 MeV energiájú protonokkal 100 pA áram mellett $2 \times 3 \mu\text{m}^2$, illetve kisáramú technikákhoz 2000 ion/s mellett $0,3 \times 0,5 \mu\text{m}^2$.

A Tandetron gyorsító a közelmúltban létrehozott CANAM infrastruktúra része (Center of Accelerator and Nuclear Analytical Methods). A CANAM 2010-ben felkerült a cseh infrastruktúra térképre („Roadmap of Large Infrastructures for Research, Experimental Development and Innovation of the Czech Republic”). Az intézet a külső felhasználók számára nyílt („open access”) hozzáférést biztosít a CANAM infrastruktúrához [10].

A nyaláb méretét egy 1000 vonal/inch rácsállandójú rézráccsal mértük meg mikro-PIXE módszerrel. A réz röntgenvonalának hozamtérképén két egymásra merőleges vonalat jelöltünk ki, és itt a vonalak mentén hozamgörbét vettünk fel. Ha a



7. ábra. A rézrács PIXE térképe (100 pA), és az X,Y pásztázási vonalak helye. A függőleges és a vízszintes vonalak menti pásztázások hozamainak illesztése.



8. ábra. A rézrács „on-axis” STIM térképe (2000 ion/s), és az X,Y pásztázási vonalak helye. A függőleges és a vízszintes vonalak menti pásztázások hozamainak illesztése.

nyaláb profilját Gauss-alakúnak tételezzük fel, akkor az X és Y hozam mérési adatokat hibafüggvénnyel illesztve kiszámíthatjuk a nyaláb féltérszélességét (FWHM). (ld. 7. ábra). Az ily módon meghatározott nyalábméret $1,9 \mu\text{m}$ és $3,0 \mu\text{m}$ az X és Y irányban 2 MeV protonokkal 100 pA árammal.

A nyaláb méretét a kisáramú tartományban is meghatároztuk STIM módszerrel. A méréshez ugyanazt a rézrácsot használtuk. A mért nyalábméret $0,3 \times 0,5 \mu\text{m}^2$ volt 2000 ion/s áram mellett (ld. 8. ábra).

Az IBA módszerekhez képest a mikromegmunkálás esetén a nyaláb gyors megszakítására és újraindítására alkalmas nyalábszaggató szükséges. Ezt egy elektrosztatikus lemezpár és egy hozzá kapcsolódó tápegység segítségével valósítottuk meg. A lemezpárt közvetlenül a tárgyrés után helyeztük el, így a kis szögű eltérítés már

elegendő mértékű ahhoz, hogy az eltérített nyaláb a kollimátorrésre fusson fel, tehát nem éri el a céltárgyat. Kikapcsolt állapotban (lemezeket leföldelve) a nyaláb egyenesen a kollimátorrés-pofák között a céltárgyra jut.

A cseh együttműködés keretében a rendszer precíz jusztirozásán, és a protonnyaláb méret specifikációjának teljesítésén túl a nehézionok fókuszálása és alkalmazása volt a legfontosabb téma. Ötleteim és számításaim alapján sikeresen fókuszáltunk szén-, oxigén- és szilíciumionokat is. Mivel ezek lényegesen nehezebbek a protonoknál és a héliumnál is (amire az OM mikroszondát tervezték), így a többszörös töltésállapotú ionok fókuszálása volt a megvalósítható opció.

Azon túl, hogy ötletekkel és irányító részvételemmel jelentős mértékben hozzájárultam a mikroszonda nyalábméret specifikációjának eléréséhez, a hazai fejlesztésekhez hasznos tapasztalatokat is szereztem. Sok esetben mi már egy fejlettebb megoldást alkalmaztunk, ezek átadása a cseh kollégák számára volt hasznos.

A kvadrupól triplétt lencsék finomhangolására kidolgozott optimalizáló eljárásom segítségével szén-, oxigén- és szilíciumionokkal is megvalósítottam a mikronyalábot a specifikált 1 μm -es nyalábmérettel Csehországban, Řež-ben [A2].

1.3. Atomki Tandetron

Az Atommagkutató Intézet az MTA infrastruktúra-pályázatain elnyert támogatásokból beszerezte a 2 MV Medium-Current Plus Tandetron részecskegyorsítót, amelyet a High Voltage Engineering Europa B.V. (HVEE) cég gyártott [11]. A cég mérnökeinek felügyelete és instrukciói alapján – az Atomki fizikusai, mérnökei és technikusai – üzemeltük be a gyorsítót 2014. májusában. Ezt követően 2015. januárjában beüzemeltük a negatív hidrogénionokat előállító duoplazmatron ionforrást az injektormágnessel és egy egyszerű, ideiglenes kapcsolómágnessel. Ez az első elrendezés azonnal lehetővé tette két kutatási nyalábvég megvalósítását: az ionnyaláb kihozatalát a levegőre és egy nukleáris asztrofizikai nyalábvég összeállítását [S6]. Időközben beszereztünk egy 9 nyalábvég csatlakoztatását lehetővé tévő professzionális kapcsolómágnessel is, ennek beüzemelése óta (2015. május) a gyorsító ionnyalábot szolgáltat, és a kapcsolómágnes kimeneteire négy nyalábcsatot építettünk fel.

A Tandetron Laboratóriumról szóló első cikkünkben [A3] a rendszer általános bemutatásán túl a gyorsító energiakalibrációját írtuk le, kiemelve a jó stabilitású, kis energiaszélességű ionnyaláb hasznosságát. Ez a kalibráció a rotációs voltmérő (generating voltmeter, GVM) kalibrációját jelenti. Ezt követően GINOP-2.3.3-15-2016-00005 azonosítószámú, „Világ színvonalú kutatói környezet kialakítása az MTA Atomki új Tandetron Laboratóriumában” című projekt keretében [S15] beszereztük a tervezett végleges konfiguráció kialakításához szükséges eszközöket: egy hidrogén és egy hélium multicusp ionforrást, egy cézium sputter ionforrást, egy 90-fokos analízis mágnessel (amelynek kilépő réseivel résáram-visszacsatolás valósítható meg).

A pontos energiakalibráció, jó stabilitás és a kis energiaszélesség elengedhetetlenül szükséges a tervezett felhasználási területek igényeihez: nemcsak a nanoszondához, de pl. a nukleáris asztrofizikához és a PIGE analízisekhez is.

A gyorsított ionnyaláb valódi E energiája a beállított E_{set} értékhez rendelhető, amit a gyorsító vezérlőszoftverével adhatunk meg. Feltételezzük, hogy a köztük lévő összefüggés lineáris:

$$E_{set} = a \cdot E + b \quad (1)$$

ahol a 1-hez, b pedig 0-hoz közeli értékű. Az E_{set} értékét a V_{ext} kionófeszültség, az e elemi töltés, az n töltésállapot, és a TV_{set} beállított terminálfeszültség határozza meg a következőképpen:

$$E_{set} = e \cdot V_{ext} + (n + 1)e \cdot TV_{set} \quad (2)$$

A kionófeszültség tipikusan 30 kV, ezt felhasználva a kívánt E energia függvényében kiszámítható a beállítandó terminálfeszültség érték.

A jelen munkában az $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$ rezonanciaenergiát $991,756 \pm 0,017 \text{ keV}$ -nek [12], a $^{13}\text{C}(p,\gamma)^{14}\text{N}$ rezonanciaenergiát $1747,6 \pm 0,9 \text{ keV}$ -nek fogadtuk el irodalmi értéként [13]. A neutronküszöb-energiákat a legújabb atomtömeg kiértékelésekre alapoztuk [14]. Ezek az értékek a $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ reakciónál $1880,43 \pm 0,08 \text{ keV}$, a $^{13}\text{C}(p,n)^{13}\text{N}$ reakciónál $3235,55 \pm 0,29 \text{ keV}$.

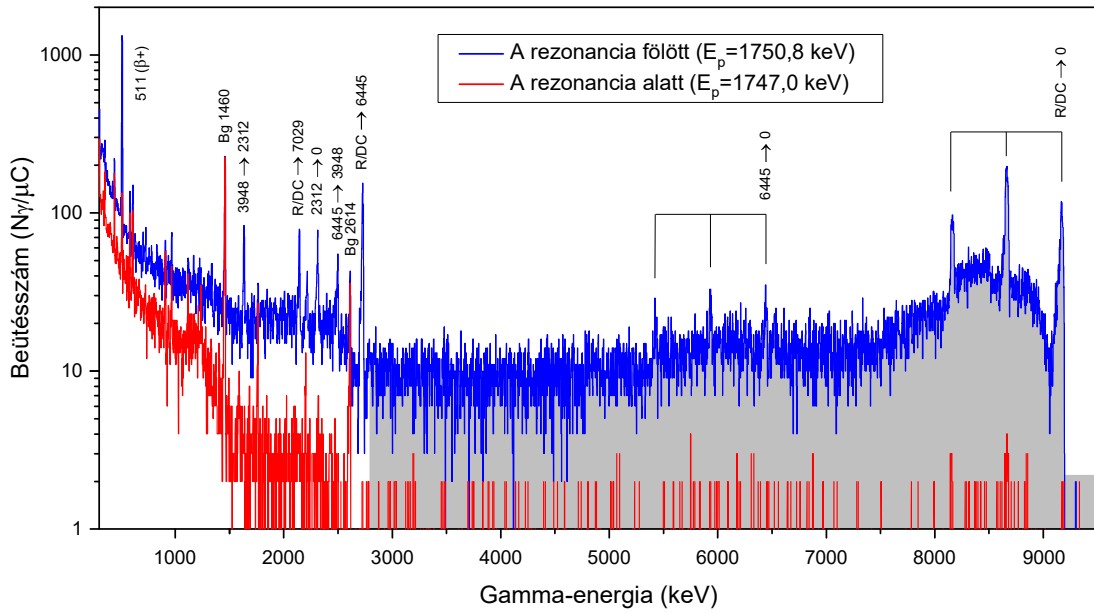
A Tandetron gyorsítónk esetében a GVM gyári kalibrációját a High Voltage cégnél csak egyetlen energiánál, a fent említett $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ reakcióval végezték el. Referenciaértékként 1880 keV-et használtak, ami kevésbé pontos, a hibáját pedig nem adták meg. Miután a gyorsító beüzemelése befejeződött, intézetünkben a kalibrációt megismételtük az előző bekezdésben megadott magreakciókkal.

Az alumínium rezonancia mérésekhez 750 nm vastag Al fóliát alkalmaztunk céltárgyként. A ^7Li küszöb mérésekhez $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ vastag LiF réteget párologtattunk Ta hátlapra. A ^{13}C reakciókhoz 99%-ban dúsított ^{13}C szénből párologtatott céltárgyat használtunk szintén Ta hátlapon.

A méréseket a nukleáris asztrofizikai nyalábcatorna vákuumkamrájában végeztük. A kamra a nyalábcatorna többi részétől elektromosan el van szigetelve. A kamra előtti utolsó apertúra átmérője 5 mm, ami szintén szigetelt, így ezen és a kamrában is tudjuk mérni az áramot egymástól függetlenül. Az apertúra után egy 10 mm átmérőjű elektronszupresszor elektródát helyeztünk el -300 V -ra előfeszítve. A céltárgy helye a kamra végén volt, lehetővé téve a gamma- (vagy neutron-) detektor közeli elhelyezését. A protonnyaláb intenzitása $0,25 - 3 \mu\text{A}$ között volt a mérések során, így biztosítva az elektronika számára a kis holtidőt.

A gamma-sugárzást egy Canberra gyártmányú 100% relatív hatásfokú n-típusú koaxiális HPGe detektorral mértük az ionnyalábhoz viszonyított 0° -os szögben. A detektor frontfelülete a céltárgytól 5 cm távolságra volt. A reakcióküszöb fölötti lassú neutronok detektálásához egy konvencionális házi gyártmányú *long counter* eszközt használtunk [15]. Ezt a detektort is az ionnyalábhoz viszonyított 0° -os szögben helyeztük el, mert a neutronok előre-szórás irányban küszöbenergia közelében egy vékony kúpszögben lépnek ki a céltárgyból. A detektor egy BF_3 hengeres proporcionális számlálót tartalmazott, amelyet egy 32,6 cm átmérőjű, 33 cm hosszú műanyag henger vesz körül. A detektor-céltárgy távolság 15 cm volt.

Az $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$ reakcióban a szilícium mag a 12,538 MeV-es rezonáns nívóról 78% arányban az 1779 keV-es energiájú első gerjesztett állapotra bomlik, majd innen tovább az alapállapotra. Ennek megfelelően a spektrumban két energiatartományt értékeltünk ki: a 10,759 MeV-es gamma-vonalat és ennek két kiszökési csúcsát tar-



9. ábra. A $^{13}\text{C}(p,\gamma)^{14}\text{N}$ magreakcióból származó tipikus gamma-spektrumok az 1747,6 keV rezonanciaenergia alatt és fölött. Szürkével jelöltem a kiértékelt energiatartományt (2,8 – 9,5 MeV).

talmazó széles területet, valamint az 1779 keV-es keskeny csúcsot.

A $^{13}\text{C}(p,\gamma)^{14}\text{N}$ mérések esetében a rezonáns nivó 85,9%-ban az alapállapotra, míg 0,86%-ban a 2,31 MeV gerjesztett állapotra, 0,50%-ban az 5,69 MeV-re, 0,62%-ban az 5,843 MeV-re, 8,9%-ban a 6,45 MeV-re, és 3,2%-ban a 7,03 MeV-re bomlik [13]. Ez a bonyolult bomláséséma számos gamma-vonalat és ezek kiszökési csúcsait eredményezi a 2,14 – 9,17 MeV energiatartományban. (A gamma-spektrumot ld. a 9. ábrán.) Az analízishez célszerű egy széles energiatartományt figyelembe venni, mert ellenkező esetben – pl. ha csak a 2,31 keV-es gamma-vonalat használnánk – túl kevés beütést kapnánk. A 2,14 – 2,8 MeV közötti energiatartományban a laborhátter interferenciát okoz, így végül a 2,8 – 9,5 MeV energiatartományt értékeltük ki.

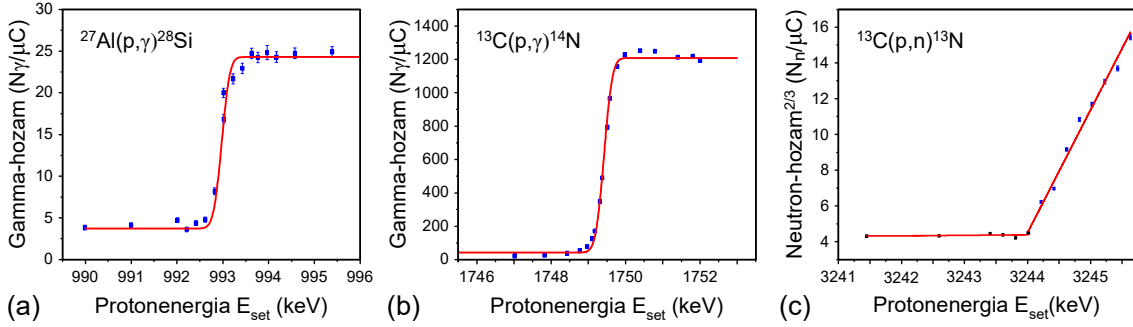
A 10.(a) ábra az $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$ reakció rezonanciáját mutatja 992 keV protonenergia környékén. A rezonancia felfutó élét hibafüggvénnyel illesztettem. A rezonancia mért szélessége (az illesztett görbéről az interkvartilis tartományt figyelembe véve) 190 eV-nek adódott. A következő hetekben történt ismételt mérések során a rezonancia helyének eltérése nem volt több, mint 75 eV, ami bizonyítja a Tandetron gyorsító kiváló energia-reprodukálhatóságát.

A 10.(b) ábra a $^{13}\text{C}(p,\gamma)^{14}\text{N}$ reakcióból származó gamma-hozamot mutatja az 1747,6 keV rezonancia környezetében. Megjegyzendő, hogy a hozam lényegesen nagyobb, mint az $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$ reakció esetén. A rezonancia szélessége (az illesztett görbéről az interkvartilis tartományt figyelembe véve) 240 eV.

A fenti két rezonancia felfutó élének szélességéből a két rezonancia természetes szélességét figyelembe véve a nyáláb energiaszélessége ~ 160 eV-nek adódik.

A 10.(c) ábra a $^{13}\text{C}(p,n)^{13}\text{N}$ reakció neutronhozamát mutatja a neutronküszöb

1 MIKROSZONDÁTÓL A NANOSZONDÁIG



10. ábra. (a) Az $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$ reakció gamma-hozama a 992 keV-es rezonanciaenergia környékén, a GVM-ből meghatározott E_{set} függvényében. (b) A $^{13}\text{C}(p,\gamma)^{14}\text{N}$ reakció gamma-hozama az 1747,6 keV-es rezonanciaenergia környékén. (c) A $^{13}\text{C}(p,n)^{13}\text{N}$ reakció neutronhozamának $2/3$ hatványa a 3235,55 keV-es küszöbenergia közelében.

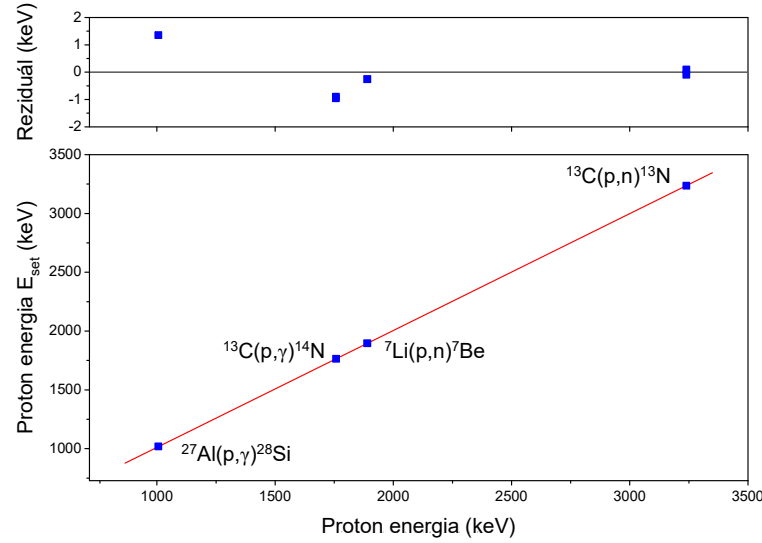
közelében. A hozam gyorsan növekszik a növekvő protonenergiával, így lehetővé teszi a teljes hozamgörbe kimérését rövid idő alatt (kb. 10 perc összesen). A *long counter* detektor hozamából meghatározható a neutronküszöb-energia a (hozam) $^{2/3}$ hatványát egyenessel illesztve [16], [17].

A rezonancia és neutronküszöb-energiák valamint a hozzájuk tartozó E_{set} értékek az 3. táblázatban láthatók. A táblázat adatait az (1) egyenletnek megfelelő illesztéshez használva a következő értékeket kaptuk: $a = 1,0029 \pm 0,0003$, $b = -1,7 \pm 0,4$, így $E_{set} = 1,0029 \cdot E - 1,7$. Az eredményeket a 11. ábra mutatja.

3. táblázat. *Rezonanciareakciók és neutronküszöb-energiák, amiket a Tandetron gyorsító GVM kalibrációjához használtunk. Az utolsó két oszlop mutatja a mérési eredményeket és azok hibáját.*

Reakció	E [keV]	Ref.	E_{set} [keV]	ΔE_{set}
$^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$	991,756 ± 0,017	[12]	992,975	0,049
$^{13}\text{C}(p,\gamma)^{14}\text{N}$	1747,6 ± 0,9	[13]	1749,48	0,19
$^{13}\text{C}(p,\gamma)^{14}\text{N}$	1747,6 ± 0,9	[13]	1749,420	0,036
$^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$	1880,43 ± 0,08	[14]	1883,708	0,045
$^{13}\text{C}(p,n)^{13}\text{N}$	3235,55 ± 0,29	[14]	3244,15	0,13
$^{13}\text{C}(p,n)^{13}\text{N}$	3235,55 ± 0,29	[14]	3243,96	0,15

A Tandetron gyorsító üzemeltetési útmutatójában a gyártó javaslata a GVM évenkénti egyszeri kalibrációja, ami tartálynyitást is igényel. A kén-hexafluorid szigetelógázt el kell távolítani a tartályból a karbantartás idejére, a gáz visszatöltésekor nagyon nehéz beállítani a nyomást az előzővel azonos értékre. Egy iterációs eljárást szükséges végezni, bizonyos mennyiségű gáz beengedése után meg kell várni a termikus egyensúly kialakulását (a gáz, a tartály fala, és a külső hőmérséklet által meghatározott stabil érték kialakulása). Ekkor meg kell mérni, hogy a nyomás elég



11. ábra. Az E_{set} energiaértékek a GVM által mért TV_{set} értékekből származtatva a gamma-rezonanciák és neutronküszöb-energiák irodalmi értékeinek függvényében.

közeli értékű-e a gyártó által javasolt nyomáshoz: 6 bar (relatív). Másrészt, többlet SF_6 gáz hozzáadása stabilabb működést eredményez a maximális terminálfeszültség használata esetén.

Ezért egy kis mennyiségű SF_6 gáz hozzáadásával megnöveltük a tartály nyomást, ami a 23°C -os szobahőmérsékleten, a termikus egyensúly elérése után kb. 300 mbar többlet nyomást eredményezett. Ezen a nyomáson is megismételtük az energiakalibrációs méréseket. A különböző szigetelőgáz-nyomás módosítja a rotációs voltmérő kalibrációját, mert a terminál és a GVM közötti dielektrikum sűrűsége megváltozik.

Ahogy az várható volt, az energiakalibrációs pontokra ekkor is lehetett egyenest illeszteni, az $E_{set} = a \cdot E + b$ egyenlet szerint, de a paraméterek kissé különbözőek lettek. A megnövelt tartálynyomás-értékekhez tartozó kalibrációs paraméterek: $a_2 = 1,0040 \pm 0,0004$, $b_2 = -2,0 \pm 0,8$. Az előzőhöz képest ez a változás ~ 4 keV legnagyobb eltérést eredményez. Pontosabb energiameghatározáshoz különböző tartálynyomások esetén új energiakalibráció szükséges.

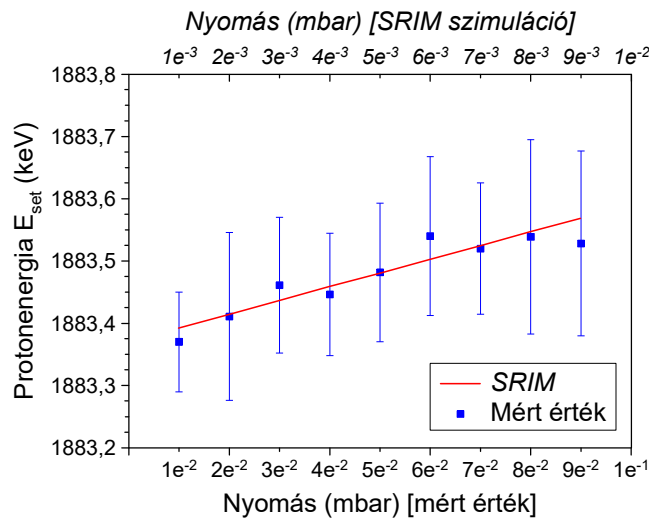
Különböző kísérletekhez különböző nyalábáramok szükségesek, tipikusan néhány μA (nukleáris asztrofizika), illetve néhány nA vagy még kevesebb (analitika). A lefosztógáz nyomását szabályozva nagyon egyszerűen módosíthatjuk a nyaláb áramát, mert a nyomástól függ az áttöltési határfok. Viszont különböző nyomású lefosztógázon áthaladva az ionok különböző energiaveszteséget szenvednek, így a kalibrációs paraméterek is módosulnak. Ezt az energiaveszteséget nehéz megbecsülni [18].

Mivel a $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ reakció mérése nagyon gyors, így meg tudtuk mérni az 1880 keV-es küszöbenergia eltolódását különböző lefosztógáznyomás-értékek mellett. A viszonylag nagy mérési hibák ellenére egy kismértékű eltolódást ki tudtunk mutatni.

A Tandetron gyorsítónk aktív lefosztógáz szabályozással van felszerelve. A lefosztó csatorna 8 mm átmérőjű és 80 cm hosszú. A körülötte koaxiálisan elhelyezkedő

vákuumkamrát egy turbomolekuláris szivattyú szívja, az elszívott gázt visszavezetve a lefosztó gáz bevezető csonkjába. Egy Pirani-típusú vákuummérővel mérjük a lefosztó gáz nyomását a beeresztés előtti helyen. A nyomást 10^{-2} mbar és 10^{-1} mbar között értékekre beállítva megmértük a neutronhozamokat. A küszöbenergiát nagyobb lefosztógáz-nyomás esetén nagyobb E_{set} értékek felé eltolódva mértük. A legnagyobb és legkisebb értékek közötti különbség csupán 0,2 keV volt.

SRIM [19] számolásokat is végeztem az effektus szimulálására. Azt találtam, hogy 10^{-2} mbar és 10^{-1} mbar nyomású argongáz a mért értékeknél nagyobb energiavesztést okozna. Viszont, ha a számításokat megismételjük 10^{-3} mbar és 10^{-2} mbar nyomású argonra is, akkor 0,2 keV különbséget kapunk a két szélső nyomásértéknél a lefosztó gáz által okozott energiavesztésben. Ez érthető, mivel a lefosztó gáz valós nyomása a lefosztó csatorna belsejében biztosan kisebb, mint a Pirani nyomásmérőnél. A mért értékek és a hozzájuk tartozó SRIM számolások eredményei a 12. ábrán láthatók.



12. ábra. Küszöbenergia a ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reakcióban a lefosztógáz nyomásának függvényében (alsó tengely), és a protonok energiavesztésének SRIM szimulációja függvényében (felső tengely). A részleteket ld. a szövegben.

Erre a cikkre a megjelésekkel azonnal érkezett néhány független hivatkozás és néhány személyes érdeklődés. Ez a tény is jelzi, hogy igény volt erre a munkára: a gyorsító energiakalibrációja így módon egyszerűen és gyorsan megvalósítható.

Az Atomki – irányításommal telepített – új 2 MV Medium-Current Plus Tandetron részecskegyorsítójánál meghatároztuk, hogy a kénhexafluorid szigetelőgáz és argon lefosztógáz nyomásváltozása miként hat a gyorsító energiakalibrációjára [A3].

1.4. Atomki nanoszonda

Ebben a fejezetben bemutatom az Atomki pásztázó ionnanoszondáját, a megtervezésétől, a megépítésén át az első nyalábméret-teszttekig. A nanoszondafejlesztés elindításának előfeltétele volt az új Tandetron gyorsító által biztosítható jobb energiastabilitású, kisebb energiaszórású, nagyobb fényességű ionnyaláb. A nanoszonda tervezése – a kvadrupól lencsákat gyártó Oxford Microbeams Ltd. (OM) céggel való egyeztetések, a specifikációk meghatározása a lehetőségek és tapasztalatok ismeretében – teljes mértékben az én feladatomban, és eredményem volt. Bár a nanoszonda projekt már a Tandetron beszerzésére irányuló első MTA Infrastruktúra pályázatnál is távlati cél volt, a támogatási forrásokat csak több kisebb részletben volt reális megpályázni, ezért a teljes projektet is modulárisan kellett megtervezni. Így a nanoszondát először ideiglenes helyen a Tandetron Laboratórium 1. ütemében kellett megépíteni, majd a GINOP projekt befejezése után a végleges helyére költöztetni.

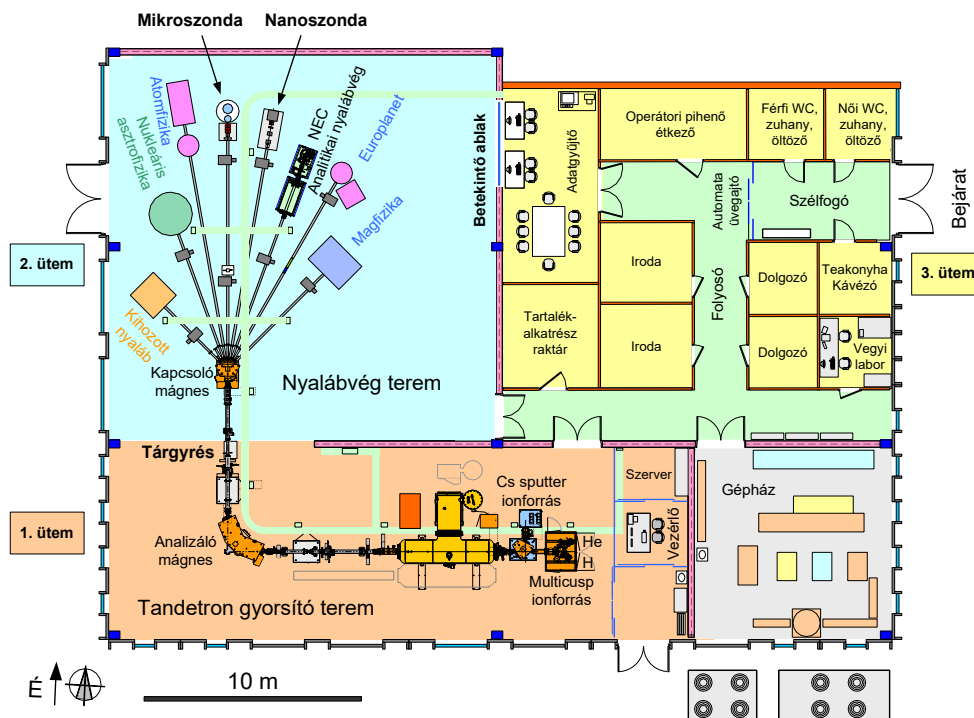
A pásztázó ionmikroszondák és nanoszondák olyan különleges eszközök, amelyek számos multidiszciplináris alkalmazásra használhatók. A MeV energiájú ionoknak az a képessége, hogy az anyagba a laterális nyalábméret minimális kiszélesedésével jelentős mélységbe behatoljanak, fontos következményekkel bír számos orvosi-biológiai, mérnöki és tudományos területen, pl. ionnyaláb-analitika, ionmikroszkópia, és nagy oldalarányú struktúrák mikro- és nanomegmunkálása polimerekben vagy félvezetőkben.

A nanoszondákban az ionnyaláb mérete a látható fény hullámhossza által meghatározott diffrakciós határ alatt van, ami különleges egyedi alkalmazási lehetőségeket teremt a nanotechnológiában. Például ezzel a technológiával a sejtbiológiában szerkezeti és fluoreszcens mikroszkópiával egész sejtek vizsgálhatók nanométeres feloldással [20]; vagy protonnyalábos írással nagy oldalarányú nanostruktúrák készíthetők különböző anyagokban [21].

Az Atomkiban 1994. óta működik a pásztázó ionmikroszonda [S1] a házi-fejlesztésű 5 MV-os Van de Graaff-gyorsítón. Ez a rendszer az elmúlt évtizedekben számos nemzetközileg elismert publikációt eredményezett. Az új Tandetron gyorsító telepítése [A3] megteremtette a lehetőségét egy új nanoszonda megvalósításának, ami a Tandetron projekt egyik elsődleges célja volt. A Tandetron a VdG-nél szélesebb energiatarományt biztosít, nagyobb energiastabilitást, és bővebb ionválasztékot nagy áramokkal. Továbbá – ami a nanoszonda szempontjából legfontosabb – a HVVEE által kínált multicusp ionforrással nagy fényességű protonnyaláb érhető el.

A cikk írásának idején a Tandetron gyorsító egyetlen ionforrással rendelkezett: egy Model 358 típusú duoplazmatron forrással. A nagyenergiás oldalon pedig a kapcsolómágnes biztosította a megfelelő energia és töltésállapot kiválasztását és a kívánt nyalábszóróba való továbbítását. A nanoszondát ezen az ideiglenes helyen – az épület 1. ütemében – építettük meg, az első eredményeket itt értük el. A nanoszonda végleges helye a 13. ábrán látható nyalábvég teremben van az épület 2. ütemében. (A 3. ütem további kiszolgáló és szociális helyiségek kialakítását fogja lehetővé tenni, pl. mintaelőkészítő, adatgyűjtő, vegyi labor, öltözők stb.)

A nanoszonda végleges helyét úgy határoztuk meg, hogy a tengelyének iránya a lehetséges legkisebb szöveget zárja be az északi iránnyal, így a Föld mágneses terének



13. ábra. A végleges alaprajz (a HVEE eszközök telepítése 2018. őszén valósult meg). A nyalábvégék telepítése azóta folyamatosan történik.

hatása a lehetséges legkisebb eltérést okozza a geometriai tengelytől. A tárgyátvolság itt lényegesen hosszabb az ideiglenesnél (6 m helyett kb. 12 m), továbbá a tárgyrest a kapcsolómágnes elé elhelyezve a réspofákon szóródó ionok nem érik el a kvadrupól lencsákat és nem fókuszálódnak rossz helyre (ezzel csökken a nyalábudvar intenzitása).

Az Atomki nanoszondájához a főbb egységeket az OM cégtől szereztük be [22]. Az OM-52 típusú kvadrupól mágnesek pólusaiban a rés 9 mm nyílású. A mágnesekben végigfutó nyalábcatorna cső külső átmérője 8 mm. Ez nagyon precíz geometriai beállítást igényel, mindössze 0,5 mm rés marad a cső fala és a hiperbolikus profilú mágnespofák között. A rozsdamentes acéلبól készült cső falvastagsága 1 mm, így a belső átmérő 6 mm, ami korlátozza az elérhető maximális pásztázható terület méretét. A kvadrupól mágneses lencsék oxfordi szétválasztott tripllett (Oxford Spaced Triplet) konfigurációban vannak elhelyezve.

Célunk volt egy multifunkciós céltárgykamra létrehozása, ezért számos vákuumbevezetőt terveztünk különböző detektorok és egyéb átvezetések számára. A kamra felső lapja felhajtható, így teszi lehetővé a mintacserét és a detektorok átkonfigurálását. A minták egy nanopozicionáló mintatartóba foghatók be (SmarAct XYZ+R).

A kamra egy optikai mikroszkóppal is fel van szerelve, ami a minta hátsó felületét látja. A mikroszkóp fix objektív lencséje vákuumon belül van, a vákuumon kívül elhelyezett lencse (közbenső csőlencse) a kamera szenzorára vetíti a képet. Ez így egy végtelenre-korrigált mikroszkópot valósít meg, ami első közelítésben nem érzékeny a két lencse távolságára (mert a két lencse között párhuzamos a fény útja).

A vákuumon kívül két adapter segítségével háromféle nagyítás közül választhatunk. Az objektív lencse fix tárgytávolságú, ezért a céltárgy nyalábtengely-irányú mozgásával hozható fókuszba, ugyanebbe a síkba fókuszáljuk a nyalábot is.

Az utolsó kvadrupól lencse a 10 mm falvastagságú kamra külső falához a lehető legközelebb van. A minta a kamrában a nyaláb belépési helyéhez nagyon közel van. Ezek összegeként adódóan rövid munkatávolság érhető el (esetünkben 36 és 86 mm között változtatható). (Összehasonlításképpen: a mikroszondánál a munkatávolság 180 mm, a szingapúri nanoszondánál 70 mm.) A kvadrupól lencsék pozíciójának nyalábbal történő finomhangolásához a leghosszabb munkatávolságot használtuk, majd a rövidebb munkatávolsággal is ellenőriztük. Az optimális munkatávolságnak 61 mm-t választottuk: itt még elég nagymértékű volt a kvadrupól lencserendszer kicsinyítési tényezője, de a minta elég távol van a kamra falától, így kényelmesebb a minták mozgatása, cseréje. A jövőben a munkatávolságot a röntgen-detektor pontos pozíciójához fogjuk beállítani, és a visszaszórási irányban helyet biztosítunk az RBS detektornak is.

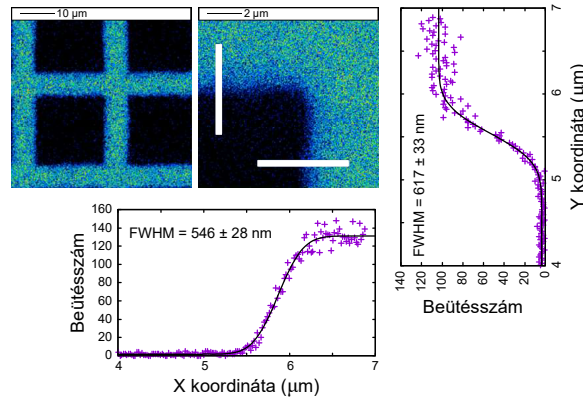
A kísérleti megvalósítás előtt WinTRAX [23] szimulációkkal megterveztem a rendszer ionoptikáját. Ezek a számítások különböző tárgytávolságokat (tárgyréslencse), és különböző munkatávolságokat (lencse-céltárgy), valamint a pásztázás szimulációját is tartalmazták. Később – a mérések különböző szakaszaiban – további szimulációkat is végeztem.

WinTRAX számításokkal meghatároztam a kicsinyítési tényezőket különböző munkatávolságok esetén. A 61 mm jó kompromisszum: $D_x=235$ és $D_y=-55$. A mérések során ezt az X:Y tárgyrés arányt tartottuk meg. Ha a munkatávolságot 36 mm-re lecsökkentettem, akkor jobb kicsinyítési tényezők érhetőek el ($D_x=330$, $D_y=-63$), de ebben az esetben lényegesen nehezebb vagy lehetetlen a minták megfelelő pozícióba helyezése. A kicsinyítési tényezők tovább növelhetők a nagyobb tárgytávolsággal. Így 61 mm munkatávolság és 12 m tárgytávolság esetén a következő értékeket kapjuk: $D_x=458$, $D_y=-107$. (A szingapúri mikroszonda esetén a kicsinyítési tényezők $D_x=88$, $D_y=-24$, ld. 1. táblázat, a nanoszonda esetén pedig $D_x=228$, $D_y=-60$, ld. 2. táblázat.)

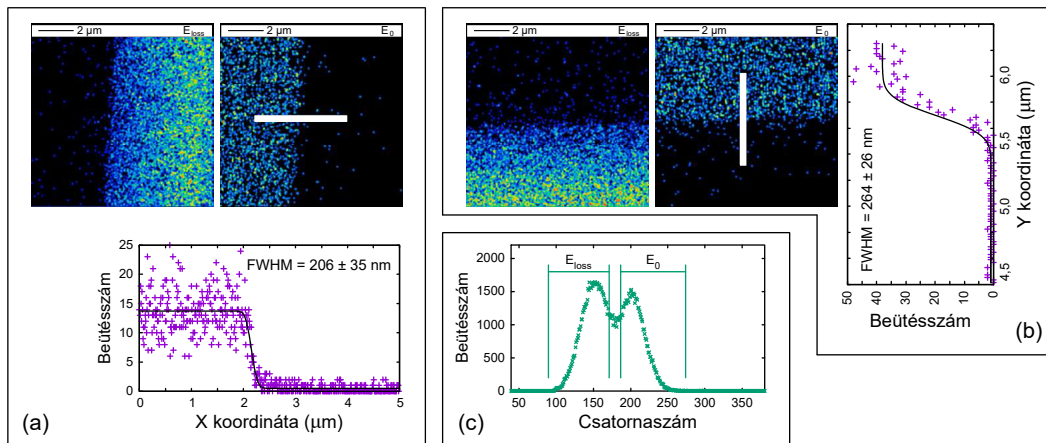
A nyalábméret tesztmérésekhez részecske-detektorként egy p-i-n dióda szolgált, melyet egy Arduino-vezérelt mozgatható tartóra szereltem fel. Így lehetséges volt a detektor beállítása a kétféle szükséges pozíció egyikébe.

A nyalábméreteket 1 és 2 MeV energiájú protonnyalábbal mértem pásztázó transzmissziós ionmikroszkópia (Scanning Transmission Ion Microscopy, STIM) módszerrel. A „nagyáramú” üzemmódban nyaláb intenzitása 2 pA és 3 nA között volt, ezért ekkor „off-axis” STIM módszert alkalmaztam egy 25,4 μm rácscsatlós kalibrációs rácson (ld. 14. ábra).

Mivel a rács éleinek minősége nem alkalmas ~ 100 nm nagyságrendű nyalábfolt méretének meghatározására – ami a „kisáramú” üzemmódban várható – így ebben az esetben egy frissen eltört szilícium egykristály mintát használtam „on-axis” STIM képalkotással. A Si mintát az ideális merőleges beesési iránytól $\sim 7^\circ$ szöggel elforgatva biztosítottam, hogy a nyaláb ne érje el a minta oldalát. Így a nyaláb valóban egy atomi élet látott. Ebben az esetben a nyaláb árama 150 Hz és 10 kHz között volt. (A kis áramok mérésekor nem a töltést kell mérni, mert az túl kevés, hanem



14. ábra. A kalibrációs rézrács „off-axis” STIM képe (rácsállandó $25,4 \mu\text{m}$). Ezt a rácsot csak a „nagyáramú” üzemmódban használtam (amikor a nyaláb méret $>500\text{nm}$), illetve a pásztázási terület kalibrációjához.



15. ábra. A Si él „on-axis” STIM térképei: (a) X-irányú pásztázás; (b) Y-irányú pásztázás. Mindkét esetben a bal oldali képek az energiavesztéget szenvedett ionok (E_{loss}), míg a jobb oldali képek az energiavesztés nélküli ionok (E_0) eloszlását mutatják. A nyaláb méretét az E_0 csúcs hozamából határoztam meg. (c) Egy tipikus STIM spektrum.

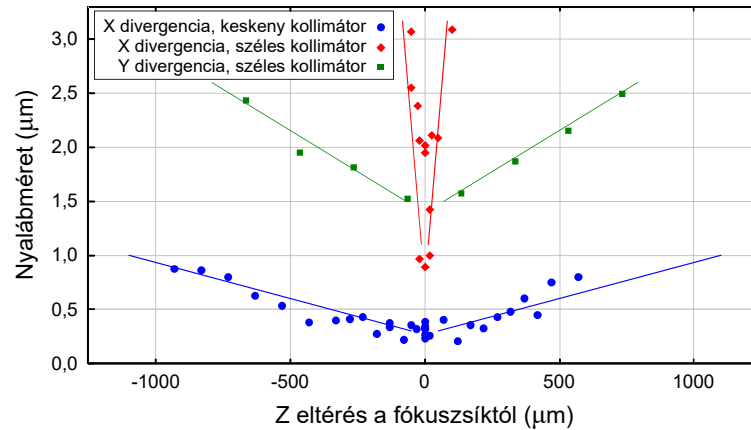
az egyedi protonokat számolni a részecskedetektorral. Pl. 10 kHz azt jelenti, hogy másodpercenként 10 000 proton érkezett, ami 1,6 fA áramnak felel meg.)

A STIM spektrumokban az E_0 csúcs a bejövő nyaláb energiájának felel meg. A Si élen bármilyen kismértékű szóródás energiavesztéget okoz, ezt E_{loss} felirattal jelöltem. Az „on-axis” STIM méréseknél a nyalábméretet az E_0 csúcs hozamának helyfüggéséből határoztam meg (ld. 15. ábra).

A 4. táblázat a mért és szimulált nyalábméreteket hasonlítja össze. A „kisáramú” üzemmódban a mért értékek nagyobbak, mint a szimulált értékek. Ennek több oka lehet, pl. mechanikai rezgések, zavaró mágneses terek. Ezen okok részletes vizsgálatát és kiküszöbölését a közeljövőben tervezzük elvégezni, a nanoszonda végleges helyre

4. táblázat. *Résnyílások, szimulált és mért nyalábméretetek és áramok.*

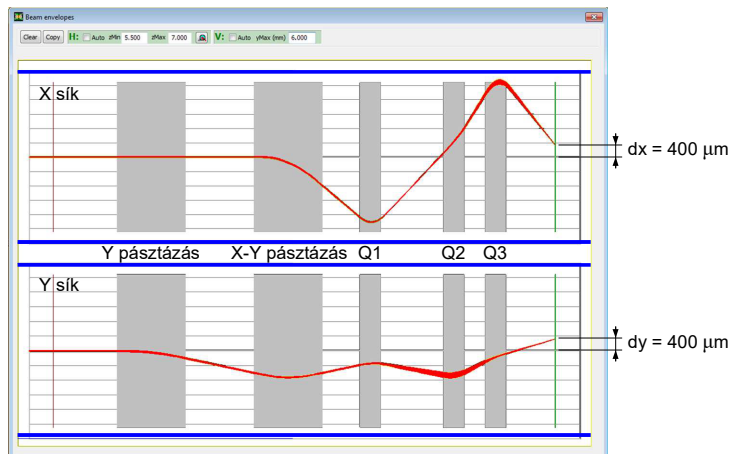
Tárgyrés		Kollimátorrés		Szimulált Nyalábméret		Mért Áram (pA)	Mért Nyalábméret		Céltárgy
X (μm)	Y (μm)	X (μm)	Y (μm)	X (nm)	Y (nm)		X (μm)	Y (μm)	
18	5	50	25	88	100	400 Hz	206	264	Si él
54	15	400	200	300	350	2	549	634	Cu rács
216	60	800	400	1230	1360	120	1413	1365	Cu rács
720	200	800	400	3280	3930	1250	1614	2508	Cu rács

16. ábra. *A divergenciamérések eredménye. Az ábra értelmezését ld. a szövegben.*

telepítésekor figyelembe venni. A „nagyáramú” üzemmódban a mért nyalábméretetek kisebbek a szimulálnál. Ennek oka lehet az, hogy a nyaláb fényessége szögfüggő, amit a WinTRAX program nem vesz figyelembe.

A nyaláb divergenciájának meghatározásához több különböző Z pozícióba elmozgattam a céltárgyat a nyaláb tengelye mentén, és ennek függvényében mértem meg a nyaláb méretét. Kis divergenciák (keskeny kollimátorrés-nyílás) esetén csak az X síkban mértem a divergenciát, ami 0,6 mrad ($0,034^\circ$) volt. Előre ismert volt, hogy ez esetben az Y síkban elhanyagolhatóan kicsi a divergencia. Nagy divergenciák (széles kollimátorrés-nyílás) esetén az X síkban 28 mrad ($1,6^\circ$), az Y síkban 1,5 mrad ($0,086^\circ$) értékeket mértem. A WinTRAX szimulációk hasonló divergencia értékeket adtak. Ennek a mérésnek az elsődleges célja az volt, hogy megértsük mennyire fontos a mintát pontosan a nyaláb fókuszsíkjába pozícionálni. Ahogyan az várható volt, a nyalábméret a legérzékenyebb a minta Z pozíciójára, az X síkban, és a nagy kollimátorrés-nyílás esetén. (Ld. a piros szimbólumokat az 16. ábrán. A V-alakú vonalak csak segítik az olvasó szemét). Látható, hogy a fókusz pozícióérzékenysége $\sim 20 \mu\text{m}$ (azaz ennyi elmozdulás hatására még nem romlik le jelentősen a nyaláb mérete). Ez könnyen elérhető, mert az optikai mikroszkóppal már $\sim 2 \mu\text{m}$ elmozdulás is látható (azaz ennyi elmozdulás hatására homályos lesz a kép).

A lencsék előtti mágneses pásztázást két pár dipóllal valósítjuk meg. Az első kvardupól lencse melletti dipól X és Y irányú tekercsüket is tartalmaz, a másik dipól csak az Y irányút az előzővel ellentétes polaritással és fele erősséggel, ily módon



17. ábra. WinTRAX képernyőkép. Az X síkban (az ábra felső részén) a nyaláb nagyon közel kerül a vékony nyalábcsontra cső belső falához (ezt a kék vonal jelöli), emiatt a maximális pásztázható terület $800\ \mu\text{m}$ ($400\ \mu\text{m}$ eltérítés). Az Y síkban a „kutyaláb” („dog-leg”) pásztázás látható (az ábra alsó része).

úgynevezett „kutyaláb” („dog-leg”) pásztázást valósít meg. A WinTRAX szoftverrel végzett további szimulációkkal ellenőriztem a pásztázás linearitását. A 17. ábrán látható, hogy az első pásztázó dipólmágnes csak az Y irányba téríti el a nyalábot, majd a második dipól ellentétes polaritással kétszeres erősséggel dolgozik. Ennek hatására a nyaláb mindig a lencsék középehez közel halad az Y síkban, mégis mire a céltárgyat eléri megvalósítható a viszonylag nagy pásztázási méret. (Egyetlen dipóllal csak nagyon kismértékű eltérítés lenne elérhető az Y irányban.) A szimulációk szerint a nyaláb eltérítése a gerjesztő mágneses tér nagyságával lineárisan változik. Ezt a vizsgálatot elegendő volt $800\ \mu\text{m}$ pásztázási méretig elvégezni (ennek a fele az egyik irányú maximális eltérítés), mert ennyire korlátozza a pásztázás méretét az X irányban a nyalábcsontra cső belső átmérője. Kísérletileg is ellenőriztem, hogy ez a pásztázási méret megvalósítható, a szükséges gerjesztő áram rendelkezésre áll, azaz a nyaláb intenzitásvesztés nélkül eléri a céltárgyat még a pásztázott terület szélein is.

Továbbá a vízszintes és függőleges nyalábméretet kiszámítottam az X és Y eltérítés függvényében. A várakozásnak megfelelően a nyaláb mérete legjelentősebb mértékben romlott a pásztázott terület sarkainál. A függőleges nyalábméretet is befolyásolja az X pásztázás, ezt a szférikus aberrációs együtthatókban meglévő X és Y síkbeli divergencia szögek (θ, ϕ) összecsatolása okozza. A vízszintes nyalábméret kevésbé érzékeny bármelyik irányú pásztázásra. Megfigyeltem, hogy $32\ \mu\text{m}$ Y pásztázási méretig ($16\ \mu\text{m}$ függőleges eltérítés) a függőleges nyalábméret változatlan maradt. Ha 512 pixel pásztázási felbontást feltételezünk, akkor nagy pásztázási méretek esetén a szomszédos pixelek távolsága nagyobb lesz, mint a leromlott nyalábméret. Így az IBA térképezések során nem várható a képminőség romlása. PBW esetén viszont csak a kis pásztázási méretek hasznosak, mert a széleknél lévő rosszabb nyalábméret miatt a létrehozott struktúrák minősége rosszabb lenne. Ezért az vár-

ható, hogy esetünkben a fix (vagy csak kis mértékben, hibrid módon pásztázott nyaláb) előtt a nanopozicionáló mintatartó programozott mozgásával (stage scan) jobb eredményeket érhetünk el. Ennek egy további előnye, hogy a viszonylag lassú pásztázás ellenére nagy területek lesznek pásztázhatók. (A SmarAct mintatartó által pásztázható terület $\sim 10 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$, míg a specifikáció szerinti pontosság 1 nm nagyságrendű.)

A nyaláb fényességét különböző tárgyrés és kollimátorrés beállítások esetén, és különböző energiájú protonokkal (1, 2 és 3 MeV) mértem meg. A fényesség a mikro- és nanoszondák esetében az ionnyaláb legfontosabb paramétere: megadja, hogy adott tárgyres méret (μm^2), divergencia (mrad^2) [ami átszámítható kollimátorrés méretre (mm) és tárgy-távolságra (m), így a $\text{mm/m} = \text{mrad}$ adódik], és nyalábenergia (MeV), esetén mennyi a céltárgyat elérő nyalábáram (A). A fényességet emiatt az irodalomban tipikusan $\text{A rad}^{-2}\text{m}^{-2} \text{eV}^{-1}$, illetve $\text{pA mrad}^{-2}\mu\text{m}^{-2} \text{MeV}^{-1}$ egységben adják meg. A mérőszám e két egység esetében – a prefixumok összeszorzásával beláthatóan – éppen azonosnak adódik. A nyaláb áramát egy házi készítésű mini Faraday-csészében mértük [24], ami a szekunder elektronok megszökését hatékonyan megakadályozza. A mért fényesség érték $0,75 \text{ pA mrad}^{-2}\mu\text{m}^{-2} \text{MeV}^{-1}$ (a duoplazmatron ionforrásból nyert protonnyalábbal és a Tandetron gyorsítón átvezetve a nagyenergiás oldalon a nanoszonda mikrométeres pontosságú réseivel és pA érzékenységgű árammérővel mérve). Összehasonlításképpen egy hasonló rendszeren, amit a HVEE cég a közelmúltban adott át (IFIN-HH, Magurele, Románia) a specifikáció szerint a garantált fényesség 0,6, a várható 2 [11], míg a mért érték 2,5 [25].

Esetünkben a HVEE cég által a multicusp ionforrás használata esetén a Tandetron nagyenergiás oldalán mérhető fényességre vonatkozó specifikáció a következő: garantált 8, várható 16. Ezek szerint a jelenleg mért fényességnél garantáltan >10 -szer jobb fényességet kapunk. A multicusp ionforrás installálásának befejezésekor ellenőriztük a specifikációt, és minden résnyílás-kombináció esetén bőven a garantált érték fölöttieket mértünk, de számos esetben a 16 fölöttieket is, elsősorban a kisebb tárgyresnyílások mellett. A nanoszonda számára éppen a kis tárgyresnyílások lesznek a tipikusak, ezért nemcsak 10-szeres, hanem valószínűleg az ideiglenes helyen mért fényesség 20-szorosára lehet számítani. Figyelembe véve azt is, hogy a kezdeti beállításnál használt 6 m helyett a tervezett tárgy-távolság 12 m lesz, ezt kis tárgyresnyílással és nagy fényességű nyalábbal kitöltve igen jó eredményekre számíthatunk: várható, hogy 100 nm vagy az alatti nyalábméretet érhetünk el. A protonokhoz szükséges kvadrupól gerjesztőáramok ismeretében azt is kiszámítottuk, hogy nehezebb ionokat, pl. He^+ , He^{2+} , C^{2+} , C^{3+} és O^{2+} , O^{3+} is fogunk tudni fókuszálni.

Megterveztem a gyorsító paramétereit optimálisan kihasználó nanoszondát, amelynek a megépítéséhez OM52 típusú új generációs kvadrupól mágneses lencsét használtam. A berendezés installációjának első ütemében a lencsék finomhangolására kidolgozott optimalizáló eljárásom segítségével 200 nm nyalábméretet értem el [A4].

2. Ionnyaláb-analitika

Kivonat

Az irodalomból ismert ionnyaláb-analitikai (IBA) módszerek hazai megvalósítása során számos esetben ütköztünk megoldandó problémákba, az ezekhez kapcsolódó fejlesztéseink az IBA módszerek nemzetközi fejlődését segítették elő.

Egyik fejlesztésünk a könnyű és nehéz elemek mikro-PIXE mérésének szimultán megvalósítása volt [B1]. Ezt a rendszert azóta rutinszerűen használjuk az IBA csoportban különböző alkalmazásokra. Erre alapoztuk azokat a pályázatokat, melyekből EU transnational access projektjeink lettek.

Ugyanebben a fejezetben számolok be a mikro-DIGE fejlesztésről is. Deuteronokkal gerjesztett magreakciókból származó gamma-sugárzást detektálva bizonyos izotópok mérésében lényegesen nagyobb érzékenység érhető el, mint protonokkal. A világon elsőként MeV-es energiájú deuteron mikronyalábot állítottunk elő, a rendszer jó működését különféle (régészeti és ökológiai) alkalmazások demonstrálták [B2].

A nyaláb méretének mérése egyszerű feladatnak tűnik, azonban mélyebben belemerülve kiderül, hogy nem is annyira triviális probléma. Ezért az IRMM és az MFA intézetek együttműködésében készült egy referencia standard, amelynek a mérésében részt vettem oxfordi posztdoktori munkám során [B3]. Méréseim eredményeként először megmutattam, hogy a nyaláb méretének mérésére és a rutinfókuszálás végrehajtására a kidolgozott standard testchip kiválóan alkalmas. Majd mátrix effektusokkal értelmeztem a szilícium elem térképeken látható hamis inhomogenitásokat. Végül a mérőelektronika holtidejének helyfüggésével magyaráztam a homogén nikkelréteg vastagságának látszólagos gradiensét.

A következő két munkában nanokapillárisok irányeloszlását határoztam meg STIM módszerrel Al_2O_3 [B4] és polikarbonát [B5] mintákban. Ezeknek a vizsgálatoknak az volt a célja, hogy validáljam a nanokapilláris minták felhasználhatóságát ionterelési vizsgálatokhoz.

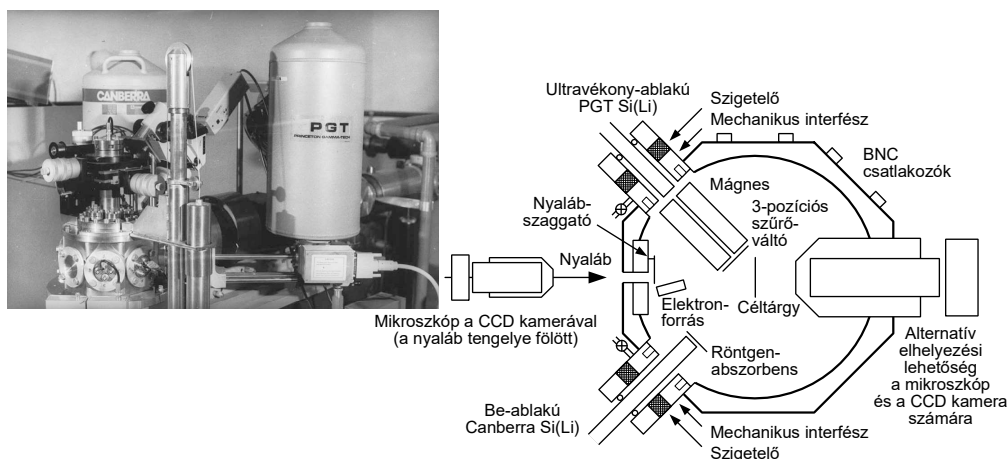
2.1. Kétdetektoros PIXE módszer

A protonokkal indukált röntgenemisszó (Proton Induced X-ray Emission, PIXE) [1] során a céltárgy atomjaiban a belső elektronhéjakon a besugárzó protonok vakanciákat keltenek, amelyekre felsőbb héjakról történő legerjesztődés közben a céltárgy egy adott elemére (rendszerére) jellemző energiájú karakterisztikus röntgensugárzás lép ki az anyagból. Ezt analizálva általában nyomelem érzékenység érhető el. A PIXE ezeknek a karakterisztikus röntgensugaraknak a szimultán mérésén alapul, ezért multielemes analitikai módszer. A legtöbb esetben roncsolásmentesnek tekinthető, ezért számos területen alkalmazzák, pl. orvosi-biológiai, geológiai, archeometriai célokra. A hagyományos (széles nyalábos) PIXE mellett egyre elterjedtebb a – fókuszált mikronyalábokkal kombinált – mikro-PIXE módszer.

A PIXE eredetileg az alumíniumnál nagyobb rendszámú elemek analízisére volt alkalmas, de alkalmassá tehető a könnyű elemek meghatározására, mert az adott rendszámú tartományban a hatáskeresztmetszetek igen jók. Eddig – néhány példától

eltekintve [26], [27], [28] – nem volt kihasználva ez a lehetőség, főként azért mert a lágy röntgensugárzás detektálása és kiértékelése nem triviális.

Esetünkben a mikro-PIXE technika könnyű elemek irányába történő továbbfejlesztéséhez az aeroszol és szferula (mikrometeorit) kutatásaink adták a motivációt [S5], [29]. Ugyanis, ezekben az esetekben az ásványi elemek mellett szén – és néha oxigén – térképezése is létfontosságú. Továbbá, mivel a mérendő objektumok mikrométeres nagyságrendűek, a mikroszkopa lehető legjobb nyalábméretét kell használnunk. Sajnos a tipikus nyalábáramok (30–100 pA) amelyet jó nyalábméretű (~1 μm) mellett el tudunk érni általában nem elegendők az RBS mérésekhez, viszont kielégítőnek bizonyultak a PIXE analízishez.



18. ábra. A két Si(Li) röntgendetektort alkalmazó, vákuumbeli mikro-PIXE kísérleti berendezés fényképe és sematikus rajza.

Az új vákuum-beli mikro-PIXE kísérleti elrendezésben két Si(Li) röntgendetektort alkalmaztunk (ld. 18. ábra), amelyek által elérhető energiatartomány részben átfed egymással. Ebben az elrendezésben az ultravékony-ablakú (Ultra Thin Window, UTW) detektor segítségével a könnyű elemeket detektáljuk a kisenergiájú röntgenvonalak mérésével ($E \approx 0,2 - 6 \text{ keV}$), míg a nagy aktív felületű Be-ablakú detektorral mérjük a közepes- és nagyenergiájú röntgensugarakat ($E > 4 \text{ keV}$) kiváló hatásfokkal. Ily módon a $Z > 5$, azaz a bórnál nagyobb rendszámú elemek jellemző röntgenvonalai szimultán detektálhatók a két detektor közül legalább az egyikkel, így csökkentve a minták sugárterhelését és a mérési időt, összehasonlítva a fentebb említett, illetve egymást követő analitikai módszerekkel.

Egyik alapelvünk az volt, hogy rugalmasan átalakítható, multifunkcionális rendszert hozzunk létre, mivel a mikroszondát többféle célra alkalmazzuk, pl. súrlódó szögű mikro-RBS [S13] vagy mikro-PIGE [30] kísérletekben. Annak érdekében, hogy biztosítsuk a különböző mérési elrendezések közti gyors átszerelés lehetőségét, mindkét detektort olyan speciális közdarabokra építettük, amivel a vákuumkamrából visszahúzhatók és eléjük vastag fémből készült vákuumablak szerelhető, így védve őket a felesleges ionáram-terheléstől (amire elsősorban a vékonyablakos detektor érzékeny).

Az UTW detektor szolgál a kisenergiájú röntgenfotonok detektálására. Ennek a detektornak az energiafeloldása (a cikk írásának idején ³) 148 eV volt az 5,9 keV energiájú Mn K_α vonalnál. A kristály névleges vastagsága 3,5 mm, aktív felülete 30 mm², az ablaka 0,38 μm vastag polimer (a polimer összetételét a gyártó cégek nem adják meg, csak a spektrumok kiértékeléséhez szükséges detektorhatásfok-függvényt a röntgenenergia függvényében). Az elérhető maximális térszög 2,5 msr. A közepes- és nagyenergiás röntgensugarak méréséhez egy Canberra gyártmányú Si(Li) detektort használtunk a következő paraméterekkel: 190 eV az 5,9 keV energiájú Mn K_α vonalnál, a kristály névleges vastagsága 5 mm, aktív felülete 80 mm², a berilliumablak vastagsága 25 μm . Az elérhető maximális térszög 90 msr.

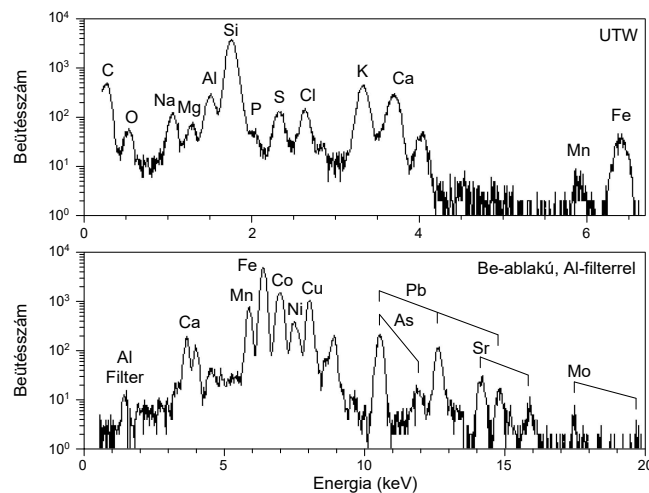
A PIXE spektrumok kiértékeléséhez az Atomkiban kifejlesztett PIXEKLM [31] szoftvert használtuk, amely alkalmas a standardok nélküli PIXE analízisre. A program az UTW detektor lehetőségeit is teljes mértékben kihasználja, így lehetővé téve a kvantitatív analízist a könnyű elemekre is.

Mivel a protonok könnyen át tudnak hatolni az ultravékony ablakon, ezzel lerontva a detektor energiafeloldását, eltorzítva a csúcsok alakját, az 1 keV alatti röntgen vonalakban veszteség keletkezhet [27], sőt még a detektorkristály is károsodhat. Ezek az effektusok elkerülhetők úgy, ha egy mágneses csapdát helyezünk el a detektor elé. Ezenkívül a fény is zavarhatja a detektor működését, ezért sötétben kell a méréseket végezni. Ez azonban nem lehetséges abban az esetben, ha maga a minta emittál fényt. [A fény spektrumának mérésével ebből is nyerhető analitikai információ. Ezt a módszert ionnyalábokkal indukált lumineszcenciának (Ion Beam Induced Luminescence, IBIL) nevezik.] Az UTW röntgendetektor használatához tehát meg kellett akadályozni a fény bejutását a detektorba. Ehhez egy vékony (40–80 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) szénfóliát helyeztünk el az ultravékony ablak elé.

Egy kompakt mágneses eltérítő egységet terveztünk és építettünk, amelyben viszonylag nagy a légrés mérete 4 mm \times 4 mm, a mágneses tér erőssége pedig 0,6 T 60 mm hosszan. A mágneses kört egy NdFeB permanens mágnessel hoztuk létre ($B_r = 1,3$ T, $BH_{max} = 300$ kJ/m³, mérete 25 mm \times 25 mm \times 40 mm), amelyet „C”-alakú vasmagba helyeztünk el. Ez az egység szűken éppen elfér a detektor és a minta között és 2 MeV energiáig képes a protonokat eltéríteni. A szokatlanul nagy légrés nagyobb térszöget enged meg, ami még kis (30–100 pA) áramok esetén is elegendő mennyiségű röntgenfotont juttat az UTW detektorba, így elfogadható beütésszámot eredményez. Annak érdekében, hogy az UTW detektort hatékonyan megvédjük a vákuumkamra belsejében lévő szórt fénytől, egy speciális kollimátort fejlesztettünk ki. Ez az egység tökéletesen illeszkedik a mágneses kör légrésébe, a röntgen és a látható fotonokat csak egy 4 mm \times 4 mm méretű négyzetes keresztmetszetű fe-

³ *Megjegyzés:* A napjainkban elérhető energiafeloldás tipikusan 130 eV. Ma már Si(Li) detektorokat nem forgalmaznak, csak SDD (Silicon Drift Detector) technológiát használnak, aminek nagy előnye, hogy nincs szüksége folyékony-nitrogén-hűtésre, viszont a kristály vastagsága tipikusan csak 450–500 μm , emiatt a nagyobb röntgen energiáknál már csak lényegesen kisebb hatásfok érhető el. Így ennek megfelelően a mai rendszerünkben az UTW detektor egy SDD; míg a Be ablakos detektor még Si(Li), így a nagyobb energiákon is jobb a hatásfoka. Mindkét jelenlegi detektorunk Gresham/e2v/SGX/RaySpec gyártmányú: ugyanaz a cég többször változtatott nevet az elmúlt években.

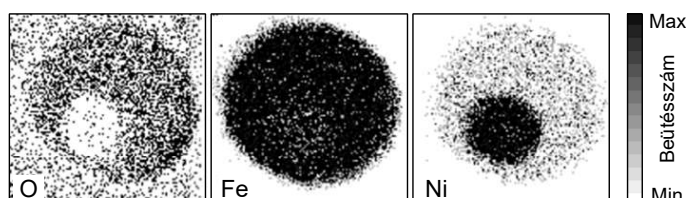
lületen engedi át. Ez egy alumínium tömbből lett kifarva és vékony réteg fekete festékkel befestve. Így az UTW detektor még a fent említett vékony szénfólia nélkül is működőképes, abban az esetben, ha a mintában a besugárzás hatására nem keletkezik túl sok látható fény. Más esetekben – pl. amikor a minta pozícionálásához erős fényt kapcsolunk be a kamra megvilágítására, vagy amikor maga a minta emittál túlságosan sok fényt – további védelem szükséges a detektor számára a működés biztosításához. Ezt a problémát úgy küszöböltük ki, hogy egy 3-állású filter tartót helyeztünk a mágnes csapda elé, ami a vákuumon kívülről állítható. Az első pozícióban nincs filter, így lehetővé téve a röntgensugárzás számára a detektorba jutást csillapítás nélkül, míg a másik két pozícióba bármilyen filter elhelyezhető. A kereskedelmi forgalomban kapható legvékonyabb ($<500 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) alumínium (vagy más anyagú) fóliák is előnyösen használhatók különös tekintettel a szelektív szűrőhatásra, ami adott kisenergiás röntgen vonalakat ki tud szűrni (pl. geológiai minták esetén a Si K_α vonal intenzitását célszerű csökkenteni). A berilliumablakú detektor elé is helyezhetünk filtereket. A legtöbb esetben $10\text{--}30 \text{ mg}/\text{cm}^2$ vastagságú alumínium fóliákat használtunk.



19. ábra. 1 mm átmérőjű kobaltkék üvegdarab mintán szimultán gyűjtött röntgenspektrumok [$E_p = 2 \text{ MeV}$; $I_p = 100 \text{ pA}$; $Q = 200 \text{ nC}$; filterek: $80 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ szénfólia (UTW detektor előtt) és $10 \text{ mg}/\text{cm}^2$ alumíniumfólia (a Be-ablakú detektor előtt)].

A 19. ábrán szimultán gyűjtött spektrumok láthatók, amelyeket egy régészeti mintán vettünk fel. Ezt a mintát azért választottuk, mert számos különböző fő-, mellék- és nyomelem összetevőt tartalmaz széles rendszám tartományban. Az ábráról világosan látszik, hogy az UTW detektor analitikai tartománya $\approx 0,2$ és 6 keV között van, ami a szén és mangán közötti elemek K_α vonalait jelenti, míg a Be-ablakú detektor a 4 keV fölötti röntgen energiára érzékeny, azaz a titántól az uránig (K, L, M vonalakra). Az utóbbi detektor belépő ablaka elé egy $10 \text{ mg}/\text{cm}^2$ vastagságú alumínium filtert helyezve kiszűrhetjük a szilícium K_α vonalát, ami számos típusú minta esetén túl erős intenzitású, így nemkívánatos pile-up effektusokat okoz. Érdeemes megjegyezni, hogy az UTW detektor energiafeloldása – a szén K_α vonalánál $\sim 100 \text{ eV}$ – még a legkisebb rendszámú elemek feloldását is lehetővé teszi.

A fentiekből világosan láthatóak a rendszerünk előnyei: mind a könnyű, mind a nehéz elemek egy szimultán mérésel detektálhatók, egyenletesen nagy érzékenységgel a röntgen gerjesztési hatáskeresztmetszetükben meglévő jelentős különbségek ellenére. A nagy térszögű Be-ablakú detektor jól kompenzálja a nehezebb elemekre jellemző kisebb hatáskeresztmetszeteket. A másik oldalon az UTW detektor kisebb térszöge ellenére lehetővé teszi a méréseket, mert a könnyű elemek röntgenkeltési hatáskeresztmetszete lényegesen nagyobb, mint a nehezebb elemeké.



20. ábra. $O K_{\alpha}$, $Fe K_{\alpha}$, $Ni K_{\alpha} + Fe K_{\beta}$ röntgenintenzitás-térképek egy mágneses mélytengeri szferula fő összetevőiről, amelyeket az UTW és a Be-ablakú detektorral gyűjtöttünk szimultán mérésben ($I_p = 30 \text{ pA}$, $Q = 65 \text{ nC}$; UTW: filter nélkül, Be-ablakú: $30 \text{ mg/cm}^2 \text{ Al}$). Pásztázott terület: $90 \mu\text{m} \times 90 \mu\text{m}$. Elemkoncentrációk (g/g): $O = 22 \%$, $Fe = 78 \%$ (köpeny), $Fe = 45 \%$, $Ni = 45 \%$ (mag). A gömb-alakú Fe-Ni magot egy FeO (wüstite) köpeny vesz körül, és csak az utóbbi tartalmaz oxigént.

A kísérleti elrendezés hatékonyságának bemutatásához egy polírozott mélytengeri üledék mintán felvett elem térképeket mutatok be a 20. ábrán. Ez a példa és számos hasonló eredményünk kétségtelenül demonstrálják a PIXE módszer előnyeit a könnyű elemek mérésénél: a karakterisztikus röntgen vonalak könnyedén detektálhatók a spektrumokban, így a kiegészítő RBS mérések nem szükségesek.

Új mérési módszert dolgoztam ki, amellyel a vizsgálandó minták teljes analitikai jellemzése megvalósítható egyetlen besugárzással a széntől az uránig terjedő rendszám tartományban. A mérőkamrában egy hagyományos Be-ablakú és egy ultravékony-ablakú (ultra thin window, UTW) röntgendetektor alkalmazásával szimultán azonosíthatók a könnyű és a nehezebb elemek is az $E \approx 0,2\text{--}6 \text{ keV}$ és az $E > 4 \text{ keV}$ röntgenenergia-tartományban. [B1].

2.2. A mikro-DIGE módszer megvalósítása

A protonokkal vagy deuteronokkal indukált gamma-emisszió (Proton / Deuteron Induced Gamma-ray Emission, PIGE / DIGE) módszer [3], [4] abban különbözik a PIXE-től, hogy míg a PIXE-nél a gerjesztő ionok nagy része az atomok elektronjaival lép kölcsönhatásba, PIGE / DIGE esetén az ionnyaláb egy kis része a céltárgy atommagjaival magreakciókat hoz létre. A keltett gamma-sugárzás spektrumának vizsgálata lehetővé teszi a minta kis és közepes rendszámú (általában Li-S) elemösszetevőinek, sőt azok izotópjainak azonosítását, és az adott mintában lévő mennyiségének kvantitatív meghatározását. A módszer érzékenysége elemről-elemre erősen

változik. A PIGE különösen alkalmas a Li, B, F és Na; míg a DIGE a C, N és O meghatározására. A keskeny rezonanciákkal rendelkező magreakciók *nm* feloldású mélységi elemeloszlás meghatározást tesznek lehetővé. Az első szisztematikus DIGE hozammérések valamint azok előzetes kiértékelése a Franciaország Múzeumainak Kutatási és Restaurálási Központjában (Centre de Recherche et de Restauration des Musees de France (C2RMF), Louvre, Párizs) történtek [4], majd ezen adatok részletes kiértékelése után vastag céltárgyak gamma-hozamait közölte csoportunk [32] számos deuteron-indukált magreakcióra a 3–15 rendszám tartományban. Ezek az eredmények azt mutatták, hogy a DIGE technika hatékony módszer a szén, nitrogén és oxigén szimultán analízisére [32], [33], [B1]. A fotonok mellett a magreakciókból eredő részecskék is alkalmasak elem/izotóp- és mélységi koncentrációeloszlás meghatározásra. A kétféle detektáláson alapuló módszert együtt magreakciós analízisnek (Nuclear Reaction Analysis, NRA) nevezik [34]. Az anyagtudományban NRA alatt gyakran csak az utóbbit értik.

A DIGE módszert eddig mások csak makronyalábbal használták. A mikro-DIGE módszer jelentős szerephez juthat olyan esetekben, amikor szén, nitrogén és oxigén szimultán detektálása és laterális térképezése szükséges.

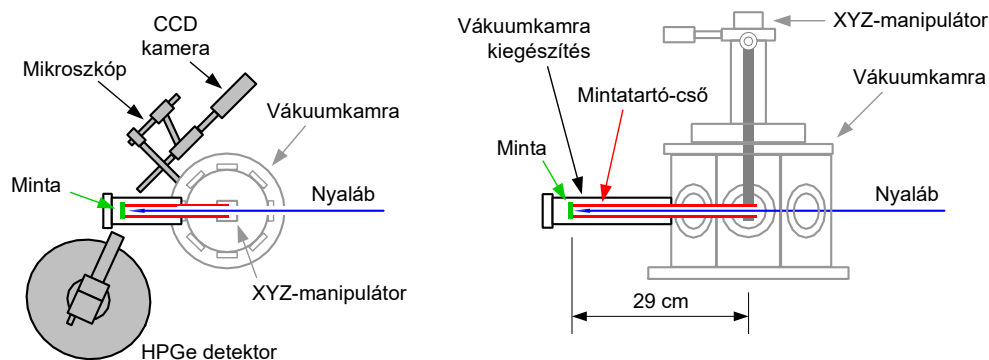
A korábbi régészeti és biológiai alkalmazásaink [35], [36], [37] során gyakran ütköztünk problémába, amikor kis mennyiségben jelen lévő nitrogén és szén koncentrációját kellett meghatározni. Ezeknél az alkalmazásoknál az elemek laterális eloszlásának ismerete is szükséges volt [37]. Emiatt célul tűztük ki egy új megoldás kifejlesztését a könnyű elemek érzékeny analízisére.

A peremfeltételek ismeretében irányításommal megterveztük a mikro-DIGE megvalósítására alkalmas módosítást a mikroszondához. A szükséges nagy térszög elérése érdekében általában a gamma-detektort a mintához minél közelebb érdemes elhelyezni, emiatt kis átmérőjű vákuumkamrát célszerű használni. A mikroszonda esetében viszont a kvadrupól mágneses lencsék a meglévő viszonylag nagy átmérőjű kamra közepére fókuszálják a nyalábot. Ezért egy kiterjesztést építettünk a kamra mögé, így a gamma-detektorokat a mintához sokkal közelebb tudtuk helyezni, ezzel lényegesen nagyobb térszöget fedve le, így megnövelve az érzékenységet. Emiatt a munkatávolság nagyobb lett, így az ionnyaláb mérete is megváltozott.

A módosított munkatávolság miatt a nyaláb méretét ionoptikai számításokkal modelleztem a PRAM [8] szoftverrel. Meghatároztam a geometriai nyalábméretet és egyéb ionoptikai paramétereket. A szimulált nyalábméret $12,5 \mu\text{m} \times 12,5 \mu\text{m}$ -nek adódott.

A mikroszonda fókuszpontját kihoztuk egy csőbe, amit a kamra 0° -os portjához csatlakoztattunk (ld. 21. ábra). Az XYZ mintamozgató manipulátorhoz rögzítettünk egy L-alakú hosszabbítást, aminek a vízszintes része egy olyan cső volt, ami kisebb mint a vákuumedény, ennek a belsejében halad a nyaláb a cső végéig, ahol a minta helyezkedik el. A minta maximális mérete $15 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$ lehet, ami a legtöbb alkalmazáshoz megfelelő. A mintacsere a vákuumkamra hosszabbító cső végén keresztül történik a sapka lecsavarásával.

Az ionnyalábot a minta felületére fókuszáltuk, ami a kamra közepénél 29 cm-rel hátrébb található. Ezt a távolságot találtuk optimálisnak: ennél hosszabb már túl sok gyakorlati problémát okozott volna (a vastag vákuumedény-cső belsejében nehezebb

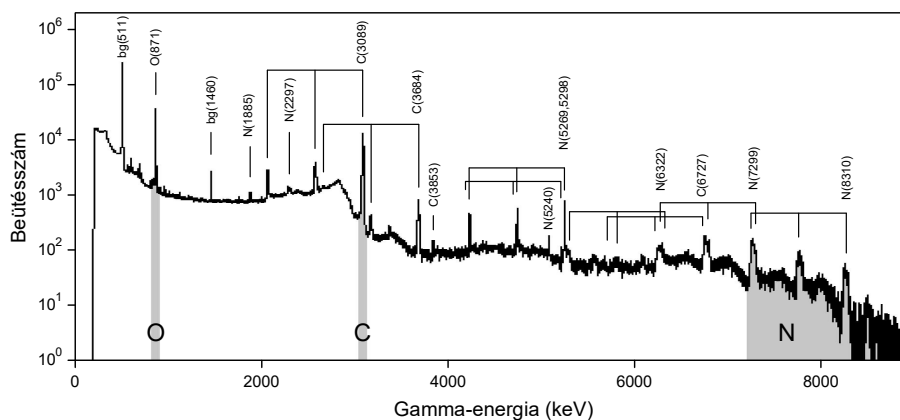


21. ábra. Az új mikro-DIGE kísérleti elrendezés rajzi.

a vékonyabb mintatartó-cső precíz mozgatása, ha az túl hosszú), rövidebbet pedig azért nem volt érdemes választani, mert akkor a gamma-detektort nem tudtuk volna elég közel tolni a mintához.

A minta felülete a meglévő nagy-munkatávolságú optikai mikroszkóppal és a hozzá csatlakozó CCD kamerával figyelhető meg. A hagyományos mikro-PIXE elrendezésben a mikroszkóp a kamra közepére néz, ezért jelen esetben az új helyen biztosítani kellett a megfelelő irányú és távolságú stabil elhelyezést a mikroszkóp számára.

A mérésekhez különböző típusú gamma-detektorokat használtunk. A 21. ábra a 40% hatásfokú HPGe (nagy tisztaságú germánium) detektort mutatja. Ez a detektor a mintához legközelebb 3 cm távolságra helyezhető, amivel $\sim 0,75$ sr térszög érhető el. A Clover típusú összetett HPGe detektor [30] esetében a minta-detektor távolság a legjobb esetben 5 cm, mert a detektor fala 2 cm vastag, és így $\sim 0,89$ sr térszög érhető el. A hagyományos elrendezésben (az oxfordi típusú vákuumkamrában) elérhető térszögek ezzel a két detektorral $\sim 0,085$ sr és $\sim 0,2$ sr, mert ez esetben a minta-detektor távolság lényegesen nagyobb (~ 15 cm). Egy tipikus DIGE spektrum a 22. ábrán látható.



22. ábra. Kapton fólia ($C_{22}H_{10}O_5N_2$) DIGE spektruma. Az oxigén, szén, és nitrogén tartalom meghatározásához a megjelölt területeket értékeltük ki.

A szén meghatározásához a $^{12}\text{C}(\text{d},\text{p}\gamma)^{13}\text{C}$ magreakciót használtuk a 3089 keV energiájú gamma-vonalnál, az oxigén meghatározásához pedig a $^{16}\text{O}(\text{d},\text{p}\gamma)^{17}\text{O}$ reakciót a 871 keV vonalnál. A nitrogén elemterképek felvételéhez a jobb statisztika elérése érdekében a 7200–8600 keV közötti gamma-energiatartományt integráltuk. Ez tartalmazza a $^{14}\text{N}(\text{d},\text{p}\gamma)^{15}\text{N}$ magreakció 7299 keV és 8310 keV energiájú vonalait, valamint az utóbbi csúcs első és második kiszökési csúcsát is.

A nyalábméret kísérleti meghatározásához egy L-alakú mintát készítettünk rozsdamentes acélból (mivel az él minősége fontos szempont volt, ezért borotvapengét használtunk), amely mögött vastag adenin ($\text{C}_5\text{H}_5\text{N}_5$) hátlap volt elhelyezve. Ebben a mintában a nitrogéntartalmat és ennek laterális eloszlását határoztuk meg. A mért nyalábméret $15\ \mu\text{m} \times 17\ \mu\text{m}$, ami kis mértékben meghaladja a PRAM számításból adódó értéket. A különbség oka a lencsehibákban keresendő: a szükséges nagy áram elérése érdekében a kollimátorrést nagyra nyitottuk, ezzel nagyobb divergenciát engedve, ami megnövelte a szférikus aberrációt. Ez a nyalábméret nagyobb, mint a mikroszondáknál tipikus érték. Ez azonban nem meglepő, mert szükséges volt a munkatávolság megnövelése, ezáltal kisebb kicsinyítési tényezőket kellett elfogadni. Továbbá aránylag nagyméretű tárgyres-beállítást használtunk annak érdekében, hogy elegendő nyalábáramunk legyen a gamma-mérésekhez.

Mivel a DIGE technika kiválóan alkalmas a szén, nitrogén és oxigén szimultán mérésére, az új kísérleti elrendezésünket ezekre vonatkozó mérésekkel teszteltük. A méréseknél nagy gondot fordítottunk az alacsony háttér biztosítására. Ismert tény, hogy a fémek jelentős mennyiségű nitrogént és oxigént képesek adszorbeálni. Így amikor az ionnyaláb beleütökzik a kollimátorrésekbe vagy a vákuumkamra felületébe, kölcsönhat az adszorbeált nitrogén és oxigén atomokkal. Ez a folyamat ezen elemek esetén megnöveli a spektrumban a beütésszámot. A háttér csökkentése érdekében 5 cm vastag ólom árnyékolást alkalmaztunk a detektor körül, továbbá a vákuumkamra kiegészítő cső belső falát réz árnyékolással borítottuk.

A méréseket 1,8 MeV energiájú deuteronnyalábbal végeztük, amit az Atomki 5 MV-os Van de Graaff-gyorsítója szolgáltatott. Azért ezt az energiát volt célszerű választani, mert ez éppen az $^{16}\text{O}(\text{d},\text{n})^{17}\text{F}$ reakció neutronküszöbe alatt van.

Az új mikro-DIGE setup analitikai képességeit archeológiai és ökológiai minták vizsgálatával demonstráltuk. A kapott elemterképek ezen tudományterületek számára fontos új eredményeket jelentettek.

A mikroszonda vákuumkamrájának megfelelően megtervezett és megépített kiterjesztésével $15\ \mu\text{m} \times 17\ \mu\text{m}$ méretű pásztázható deuteronnyalábot hoztam létre $\sim 1\ \text{nA}$ árammal, így a világon elsőként valósítva meg a mikro-DIGE analitikai módszert. A kapott kísérleti adatok összhangban vannak az elméleti számításokkal. A gamma-sugárzás detektálására a korábbi értéknél lényegesen nagyobb detektor térszöget sikerült elérnem. (Egy 40%-os HPGe detektorral 0,085 sr helyett 0,75 sr, illetve Clover összetett HPGe detektorral 0,2 sr helyett 0,89 sr.) Az elkészült mikro-DIGE mérőkamra jó működését különféle (régészeti és ökológiai) alkalmazások demonstrálták [B2].

2.3. IRMM standard

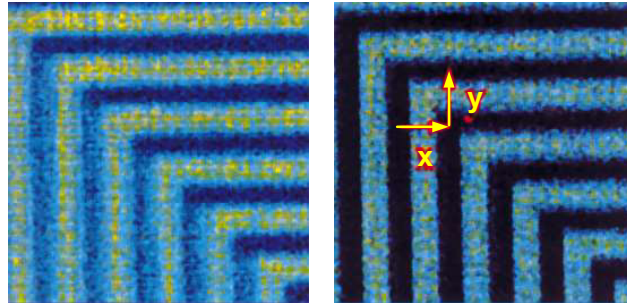
Az elmúlt években folyamatos diszkusszió tárgya volt az ionmikroszkopozsda közösségben az igény egy megfelelő standard kifejlesztésére, amely egyértelműen lehetővé teszi a MeV energiás ionnyalábok méretének meghatározását. Az 1996-os mikroszkopozsda konferencián (Santa Fe, AZ, USA) egy külön workshopon foglalkoztunk a mikronyaláb rendszerek feloldásának mérésével, és itt is arra a következtetésre jutottunk, hogy sürgős szükség van standard mintákra. Továbbá, ez a munkacsoport formálisan is felkérte Uwe Wätjnt [Európai Bizottság Egyesített Kutatóközpontjának Referencia- és Mérésügyi Intézete (Joint Research Centre, JRC, Institute for Reference Materials and Measurements, IRMM)] egy ilyen standard kifejlesztésére. Ezzel egyidőben a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség extrém kisméretű minták elemi analitikájával (elektronok, kis- és nagyenergiás ionok, lézer, röntgen) foglalkozó tanácsadó testülete is explicite felhívta a figyelmet a standard szükségességére.

Ezért az IRMM a budapesti MFA kutatóival együttműködve elkezdte egy ilyen célokra alkalmas standard kifejlesztését [38]. Az élek minőségére vonatkozó igények magas szintűek voltak: a vonalak hullámzása és az alakzatok éleinek egyenetlensége $<0,1 \mu\text{m}$; a fémcsíkok vastagsága, azaz a lépcsők magassága $<1 \mu\text{m}$, így a jeleket torzító szél effektusok kis méretűek maradnak [39].

A méréseket az Oxfordi Egyetem Anyagtudományi Tanszékén található pásztázó protonmikroszkopozsda végeztem [40]. A protonnyaláb energiája 3 MeV, az árama 50–100 pA között volt. Néhány méréshez $125 \mu\text{m}$ vastag Kapton filtert használtam, így eltávolítva a túl erős Si K_{α} röntgenvonalakat. A mérések többségét azonban filter nélkül végeztem, ezzel minden összetevő elem K vonala detektálható volt. A visszaszórt ionokat egy felületi záróréteges detektorral gyűjtöttem Cornell-geometriában, 160° pozícióban, 43 msr térszögben. A PC alapú multiparaméteres adatgyűjtő rendszert [41], három pásztázási üzemmódban használtam: egy pontban (ahol spektrumokat vettem fel), különböző hosszúságú vonalak mentén, és végül a 2-dimenziós térképeken különböző méretű és alakú kijelölt területeken. A 2D térképeket 256×256 pixelben gyűjtöttem. Ha a pásztázás sebessége túl gyors lenne, akkor ez a nyaláb méret degradációjában jelentkezne; sőt extrém esetekben úgy tünne, mintha megduplázódna a kép. Ennek elkerülése érdekében lassú pásztázási sebességet alkalmaztam: a pixelenként eltöltött idő (dwell time) tipikusan 5–10 ms volt. (Ez azt jelenti, hogy egy teljes pásztázás kb. 5–10 percig tartott.)

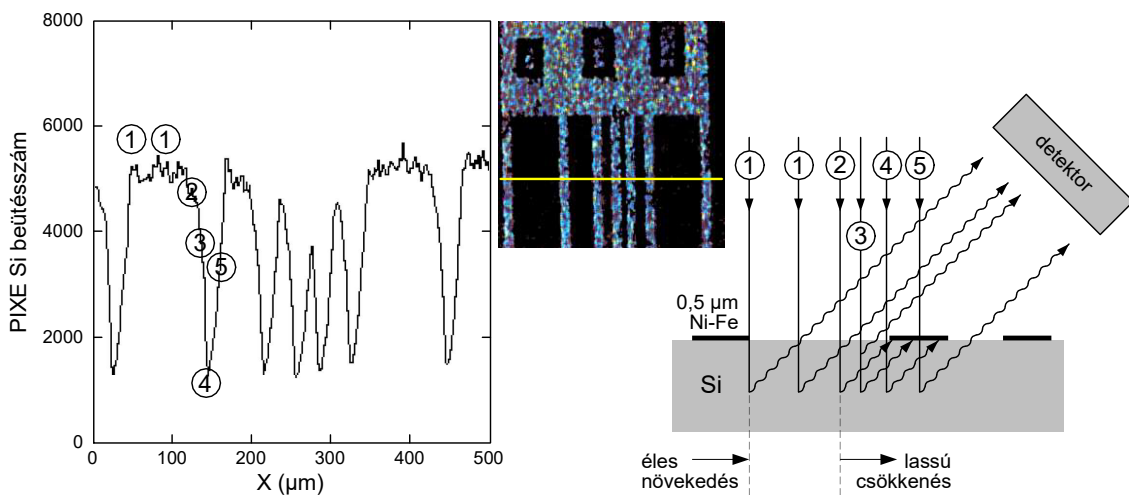
A mikronyalábot először egy kvarclemezre fókuszáltam. A nyalábfókusz finomhangolásához az új prototípus mintát használtam. A nyaláb pásztázása során az események kiválogatása és ábrázolása valós időben történt. Ortogonális vonalpásztázás (sarok scan) bizonyult a leghatásosabbnak a fókuszálási eljárásban: a sarokhoz közel L alakban mozgattam a nyalábot (ld. a Ni elem térképet a 23. ábrán). A nyaláb mérete X és Y irányban meghatározható egy ilyen alakú rövid pásztázott vonal kiértékelésével. Így a fókuszálási paraméterek kis korrekciója nagyon rövid idő alatt elvégezhető. Ebben a munkában a tipikus nyalábméret $1,5 \mu\text{m}$ volt.

Nikkel és szilícium PIXE elem térképek láthatók a 23. ábrán. A $20 \mu\text{m}$ széles egymásra merőleges vonalak, és a köztük lévő üres rések megjelenése a Si és Ni eloszlásban nagyon különbözőnek tűnik. Míg a Ni eloszlás meglehetősen jól definiált,



23. ábra. *PIXE* intenzitástérképek Si (bal) és Ni (jobb). A térképek területe $250\mu\text{m}\times 250\mu\text{m}$. Az L alakú vonal menti pásztázás helyét a jobb oldali ábrán sárga nyilak jelölik. E vonal mentén pásztázva a nyalábot egy mérésből meghatározható az X és Y irányú nyalábméret is.

a Si eloszlás teljesen elmosódott az X irányban. Az effektus magyarázatához ld. a következő ábrát.

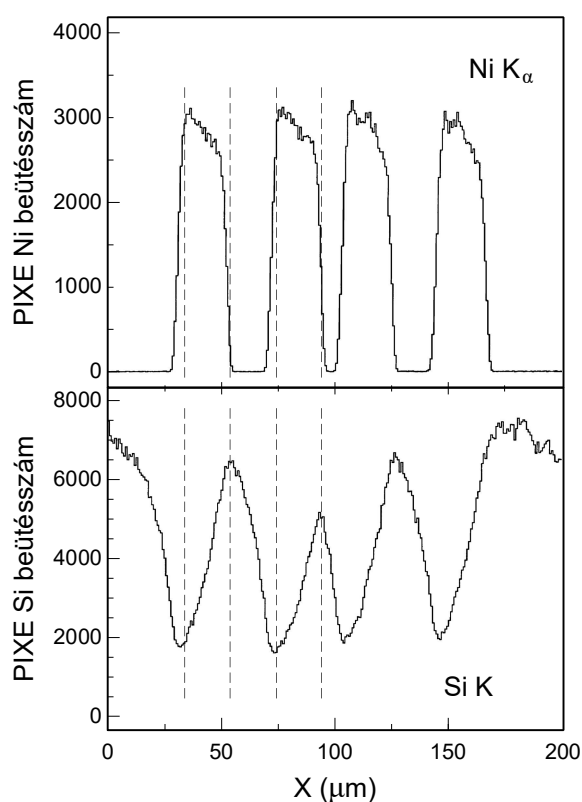


24. ábra. *Szilícium PIXE hozam a hely függvényében* (az ábra bal oldali része). $500\mu\text{m}$ hosszú vízszintes vonal menti pásztázás képe. A nyaláb a minta függőleges vonalait keresztelte (ezt jelöli a közepén látható nikkeltérképen a sárga vonal). A számokkal jelölt nyilak különböző jellemző helyeken mutatják a belépő protonnyalábot, és a mintából a detektor felé haladó röntgenfotonok útját (további magyarázat a szövegben).

A szilícium eloszlás magyarázatához tekintsük a 24. ábrát, amely a $20\mu\text{m}$ széles függőleges vonalakon keresztül X-irányú vonalpásztázás eredményét mutatja. A szomszédos vonalak távolsága $100, 50, 20, 10, 20$ és $100\mu\text{m}$ a chip illesztő keretében.

Nyilvánvaló, hogy a Si jel a teljes intenzitást csak a széles résekben ($100\mu\text{m}$) éri el, ahol nincs közel a permalloy réteg. Minden más (kisebb) részben a Si csúcsok abszorpciót szenvednek, ahogy ez látszik a platók (vagy csúcsok) jobb oldalán lévő exponenciális csökkenésből, valamint a csúcsok és platók bal széleinél az ex-

ponenciális növekedésből. Meg kell jegyezni, hogy a $0,5\ \mu\text{m}$ vastag permalloy réteg a $3\ \text{MeV}$ energiájú protonok számára csak kb. $30\ \text{keV}$ energiaveszteséget okoz, míg a Si röntgenfotonoknak kb. 85% -át nyeli el. Ez azt jelenti, hogy a permalloy réteg alatt keletkező Si röntgenfotonok láthatók lesznek a detektor számára, ha el tudják hagyni a céltárgyat a detektor irányába. Ez látható a 24. ábrán az 5-ös számú pálya esetében. Természetesen az intenzitásuk csökken a Si rétegben történő önabszorpció miatt (a Si röntgenfotonok 50% -a a tömbi szilícium első $5,6\ \mu\text{m}$ mély rétegéből származik, míg 90% -uk $19\ \mu\text{m}$ mély rétegből). A 3-as számú ionpálya végénél keletkező röntgenfotonok gyakorlatilag elnyelődnek a permalloy abszorbenstben, de ha ugyan-ezen ionpálya mentén a felülethez közelebb történik a röntgengerjesztés, akkor azok a fotonok el tudják hagyni a mintát az abszorbenst nem keresztezve, és eljutnak a detektorig.



25. ábra. PIXE Si és Ni hozamok. A nyalábot X irányban pásztáztam $200\ \mu\text{m}$ hosszan a függőleges irányú permalloy csíkokon keresztül.

A 25. ábrán mutatott látszólagos Ni PIXE gradiensek nem magyarázhatók abszorpciós effektusokkal. Egy $0,5\ \mu\text{m}$ vékony permalloy rétegben ezek elhanyagolhatóak. Továbbá a Ni és Fe RBS térképei azt mutatták, hogy a platók teteje vízszintes (igaz ez elég gyenge statisztikával látszott csak). Végül a minta 180 fokkal való elforgatása kizárta az anyagmenyiségben látszó gradienst: a forgatás után a Ni platóban látható lejtés és a Si mátrix hatás is változatlan maradt. Geometriai effektusok (pl. árnyékhatás az élek mellett) szintén kizárhatók, mivel a permalloy csíkok szélessége $20\ \mu\text{m}$ a magasságuk viszont csak $0,5\ \mu\text{m}$.

A Ni és Si térképek pontos összehasonlítása adja meg a magyarázatot. A Ni plató lejtését az okozza, hogy ugyanezekben a helyeken a Si beütésszám exponenciálisan nő. A mindössze 50–100 pA nagyságú áram jelentős mennyiségű holtidőt generált az elektronikában (15–20 %). Ez a holtidő okozza, hogy a Ni jel mérésére ugyanannyi töltés begyűjtése mellett kevesebb idő jut, ezért a nagyobb Si beütésszámnál kisebb lesz a Ni csúcs hozama.

Ezt a magyarázatot igazolandó céllal egy 125 μm vastag Kapton fóliát helyeztem röntgen abszorbensként a Si(Li) detektor elé. Így a szilíciumból származó nagy beütésszámot gyakorlatilag nullára csökkentettem, míg a vas és nikkell K_α fotonokból ez a szűrő >80%-ot átenged. A PIXE Ni és Fe térképek ebben az esetben egyenletes eloszlást (vízszintes platót) mutattak.

Megmutattam, hogy a nyaláb méretének mérésére és a rutin-fókuszálás végrehajtására a kidolgozott standard teszchip kiválóan alkalmas. Matri克斯 effektusokkal értelmeztem a szilícium elem térképeken látható hamis inhomogenitásokat. A mérőelektronika holtidejének helyfüggésével magyaráztam a homogén nikkelréteg vastagságának látszólagos gradiensét. Megmutattam, hogy az eredeti célon túl a tesztminta kiváló demonstrációs lehetőség a mikronyaláb felhasználók oktatása terén [B3].

2.4. Nanokapillárisok irányeloszlása

Al_2O_3 nanokapillárisok

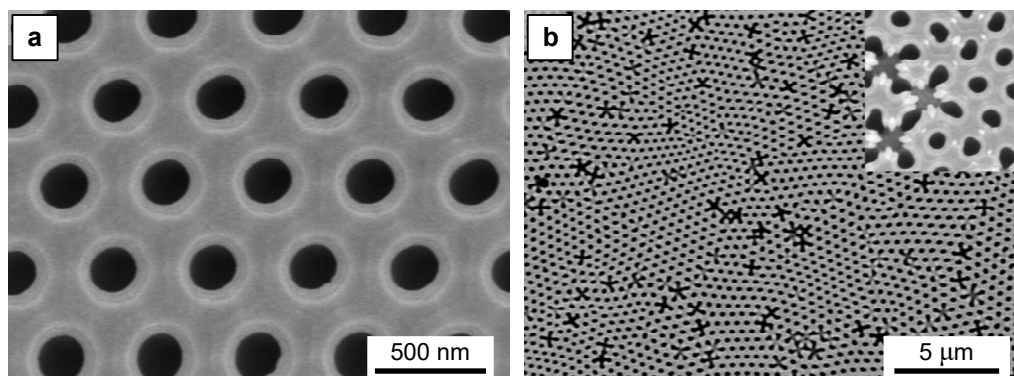
A nanokapillárisokat tartalmazó anyagok különleges tulajdonságaiknak köszönhetően nagy jelentőséggel bírnak, mivel jelentős hatásuk lehet a nanostruktúrák és nanoeszközök készítésére. Ezen anyagok közül az alumínium-oxid előnyei a következők: (i) a nanokapilláris struktúra geometriai paraméterei egyszerűen hangolhatók [42]; (ii) a nanokapillárisok önszerveződő módon hexagonálisan nagymértékben rendezett rendszerben keletkeznek [43]; és (iii) kompatibilitás a legtöbb mikro- és nano-feldolgozó módszerrel [44], [45].

Az ilyen nanokapillárisokat tartalmazó anyagok – különös tekintettel azok, amelyek öntartók – nagyon ígéretesek pl. nanodrótok és más nanostruktúrák készítésére szilárdtesteken [46], és flexibilis hordozókon [47].

Ezek a nanokapillárisok különösen alkalmasak az ion- [48], és elektron-terelési (guiding) [49], [50] folyamatok tanulmányozására. Ezt az ion- és elektron-terelési folyamatot a közelmúltban fedezték fel, és még nem teljes mértékben megértett, értelmezett a jelenség [51]. Ez az érdekes terelési effektus nagyon ígéretes abban a tekintetben is, hogy alkalmas lehet ionokkal vagy elektronokkal történő párhuzamos írás megvalósítására maszkon keresztül.

Azért, hogy ennek a jelenségnek a természetét pontosabban megérthessük, a kapillárisok jellemzésére jobb vizsgálati módszerek szükségesek. Az elektromos és strukturális tulajdonságok különösen fontosak.

A 26.(a) ábrán a minta felületének egy kis területe (nagy nagyítású képe) lát-



26. ábra. *Hexagonálisan nagymértékben rendezett nanokapilláris rendszer pásztázó elektronmikroszkópos fényképe. A pórusok átmérője ~ 215 nm, a köztük lévő távolság ~ 450 nm. (a) Nagy nagyítású kép. (b) Kis nagyítású kép. A nanokapillárisok $1-10 \mu\text{m}$ méretű doménekbe szerveződtek. A domén határok kereszteződéseiben virág-szerű alakzatok látszanak, és a belső ábra mutatja, hogy a kapillárisok nincsenek összeolvadva az alakzat belsejében. A belső ábra mérete $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$.*

ható. Az ilyen tökéletes hexagonális szimmetria meglétéből következik, hogy az itt látható kapillárisok tengelyeinek egymással párhuzamosnak kell lenniük, ami viszont nagymértékű transzparenciát eredményezne. Ha csökkentjük az elektronmikroszkóp nagyítását, azaz a minta felületének egy nagyobb részét fényképezzük, akkor már láthatóvá válik, hogy ez a tökéletes rend csak bizonyos véges domén méretekig érvényes (ld. 26.(b) ábra). A domén határokon a hexagonális szimmetriában hibák láthatók.

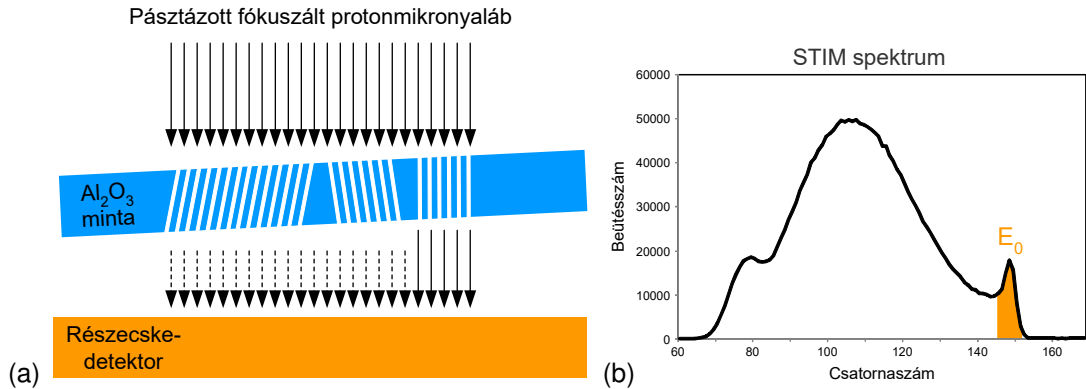
A rendszerező analízis [52] azt mutatta, hogy a domének tipikus mérete $1-10 \mu\text{m}$ nagyságrendben van, átlagosan $\sim 4 \mu\text{m}$ karakterisztikus laterális mérettel.

A különböző domének kapillárisai nem feltétlenül párhuzamosak egymással. Felmerült a kérdés, hogyan tudnánk megmérni a domének kapilláris tengelyeinek a szögeloszlását.

Az optikai mikroszkópia nem alkalmas erre a feladatra, mert az Al_2O_3 anyaga széles sávban transzparens, és a kapillárisok méretei a látható fény hullámhosszával összemérhetők.

A pásztázó elektronmikroszkópia elsősorban a felület morfológiájának vizsgálatára alkalmas (ld. 26. ábra), a mélyebb rétegek transzmissziós módú analizésére már csak erősen korlátozott lehetőségeket nyújt. A nagy oldalarányú (high aspect ratio) csatornák belső felületén történő töltődési effektusok megváltoztatják a képet. Az is ismert, hogy az elektronok a nagy töltésű ionokhoz (highly charged ions (HCI)) hasonlóan viselkednek, azaz terelési jelenség jön létre [49], [50].

Nagyenergiás könnyű ionok nem okoznak töltődési problémát: legalábbis rövid idő alatt nem fog kialakulni olyan mennyiségű töltés a szigetelő felületen, ami torzítaná az ionok pályáját [6]. A MeV energiájú protonok abban az esetben fognak energiavesztés nélkül azonnal átjutni a kapillárison túlra, ha ezt a geometriai nyílásszög lehetővé teszi. A nyaláb irányához képest nagyobb szögben elhelyezkedő ka-

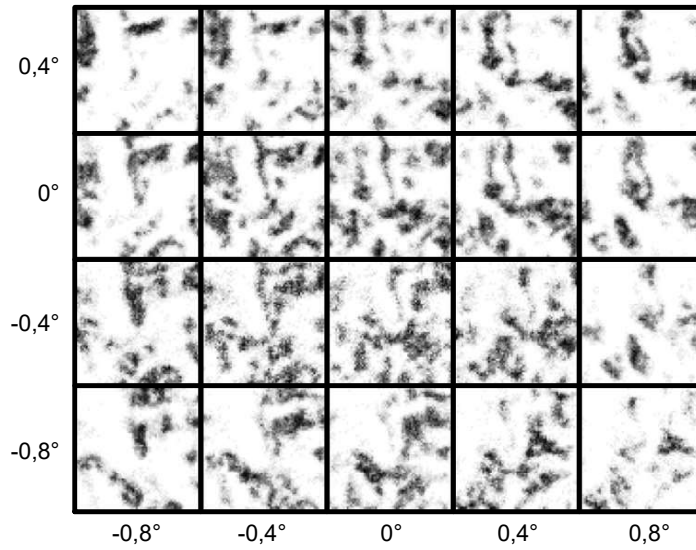


27. ábra. (a) A STIM mérés sematikus elrendezése. A minta két egymásra merőleges tengely körül forgatható, így különböző nanokapillárisok válnak átlátszóvá. A folytonos vonalú, hosszabb nyilak az energiavesztés nélkül átjutott protonokat, a szaggatott vonalú, rövidebb nyilak az energiavesztést szenvedett protonokat jelölik. A minta mögött elhelyezett részecske-detektor nem helyzetérzékeny, a fókuszált mikronyaláb határozza meg a laterális helyzetet. (b) STIM spektrum. Az E_0 csúcs a bombázó ionenergiának felel meg.

pillárisok esetén is létrejöhét az ionterelési folyamat, aminek felépüléséhez azonban hosszabb időre van szükség. Mi ezen mérések során minden esetben csak a gyors átjutást vizsgáltuk, mert így tudtuk jellemezni a kapillárisok irányeloszlását.

A STIM méréseket az Atomki pásztázó ionmikroszondáján végeztük Debrecenben [S1]. A mérési elrendezés a 27.(a) ábrán látható. A protonenergia 2 MeV, az intenzitás 1000 proton/s volt. A nyaláb mérete $\sim 1 \mu\text{m}^2$ volt, a pásztázott terület $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$. A nyalábdivergencia $0,07^\circ$ -nál kisebb volt, ami sokkal kisebb, mint egy kapilláris nyílásszöge. Egy 50 mm^2 méretű felületi záróréteges szilícium detektort használtunk a minta mögött elhelyezve a protonok detektálására és energiájuk meghatározására. Ez a detektor nem helyzetérzékeny, az események helyét a nyaláb pásztázási koordinátáiból határoztuk meg. A bombázó ionok a pályájukkal párhuzamos tengelyű kapillárisokon energiavesztés nélkül repülnek át. Így ezek a nagyenergiás (E_0) csúcsban jelennek meg a STIM spektrumban (ld. 27.(b) ábra). Más ionok energiavesztés árán jutnak át az Al_2O_3 anyagon. A SRIM program [19] segítségével kiszámítottam a maximális energiavesztést, ami $15 \mu\text{m}$ vastag tömbi anyagban 850 keV-nek adódik, így közel minden proton el tudja érni a detektort. Ezért az E_0 csúcs területét a teljes spektrum területére lehetett normálni. Így tehát a mintán átjutott protonok energiája, pozíciója és összes száma is rögzíthető volt.

A nyaláb mérete nagyobb volt, mint a kapillárisok átmérője, de elegendően kicsi a domén méretekhez viszonyítva. Az E_0 energiájú jelekhez tartozó pásztázási koordinátákat az OMDAQ adatgyűjtő szoftverrel ábrázoltam egy 2D térképen. A 28. ábrán a sötét területek jelentik a nagyobb beütésszámokat. A fehér területek azt jelentik, hogy ott nem érkeztek energiavesztés nélküli protonok a detektorba. A protonok ott csak úgy érték el a detektort, hogy a mintán energiavesztéssel haladtak át.



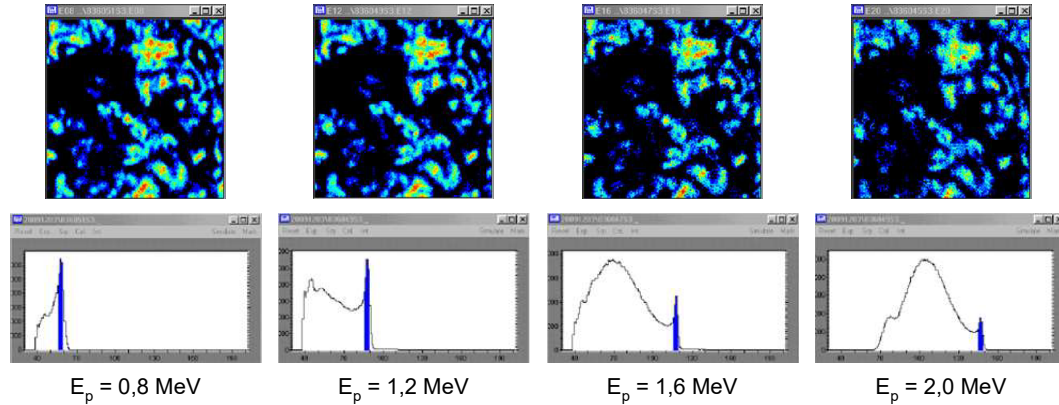
28. ábra. *Transzmissziós térképek különböző döntési szögek esetén. A sötét területek nagyobb transzmissziós hányadost jelentenek az E_0 energiaablakban (nincs energia-vesztés). A szomszédos ablakok közötti szögelfordulás $0,4^\circ$ volt két egymásra merőleges tengely körül.*

A mintát kismértékben elforgattuk, és minden egyes szögállásnál felvettük az E_0 térképeket. Az egyes különböző doméneket azonosítottuk, ahogy fokozatosan elhalványultak, míg más domének intenzívebbek lettek.

Az egyedi domének transzmisszióját is meghatároztam. Ehhez a transzmissziós térképen egy maszkot hoztam létre (azt a területet jelöltem ki, ahol az aktuálisan beállított szög mellett a legnagyobb volt az átvitel), és csak innen gyűjtöttem a jeleket. Az így gyűjtött STIM spektrumban lényegesen erősebb volt az E_0 csúcs (pl. a 27.(b) ábrán látható csúcsnál kb. 4-szer nagyobb). A transzparencia meghatározható, ha az E_0 csúcs területét elosztjuk az össz-beütésszámmal (minden bejövő proton számával). Ezt az eljárást megismételtem sok különböző domén területén, különböző szögek mellett, és az eredmény minden esetben hasonló volt: $\sim 19\%$. Ez jó egyezést jelent a geometriából számítható értékkel (a nanokapillárisok nyitott keresztmetszetének a területe osztva az össz-területtel, ld. 26. ábra).

Meghatároztam az E_0 csúcs intenzitását a teljes pásztázott területen a minta elforgatás szögének függvényében. Az adatokat Gauss-függvénnyel illesztettem. A kapilláris tengelyek szögszórása ebből származtatható, mint az illesztett görbe félérték szélessége, ami $1,98^\circ$. Egy egyedi kapilláris geometriájából ennél kisebb nyílásszög adódik ($0,8^\circ$). A görbe magassága a teljes transzparenciára jellemző, ami $\sim 5\%$.

Végül egy másik kísérletet is elvégeztem: az E_0 térképeket ugyanazon szögállásoknál felvettem a minta ugyanazon helyén különböző protonenergiáknál: $0,8$ MeV; $1,2$ MeV; $1,6$ MeV; $2,0$ MeV. Ebben a kísérletben szintén azt az eredményt kaptam, ami várható volt: a térképek nem mutatnak energiafüggést, tehát ha sikerült a mintán pontosan ugyanazt a területet vizsgálni, akkor azonos átlátszósági térkép adódott. Viszont a spektrumokban látszik, hogy csökkenő protonenergiával egyre in-



29. ábra. A négyféle energiánál felvett STIM spektrumok és az energiavesztés nélküli csúcsok hozamai a hely függvényében. A spektrumok azonos erősítésnél készültek, így az energiakalibráció is azonos. A különböző energiájú protonok és a megfelelő csatornaszámok: $0,8\text{MeV} - 60.$ csatorna; $1,2\text{MeV} - 90.$ csatorna; $1,6\text{MeV} - 119.$ csatorna; $2,0\text{MeV} - 148.$ csatorna.

kább lecsökken az energiavesztéséget szenvedett ionok intenzitása. Ez azért van így, mert a kisebb bejövő energia számára már túl sok veszteséget okoz a teljes minta kb. $15\ \mu\text{m}$ vastagsága. A kisebb energiáknál már nem lehet használni a spektrum teljes területét töltés normalizálásra.

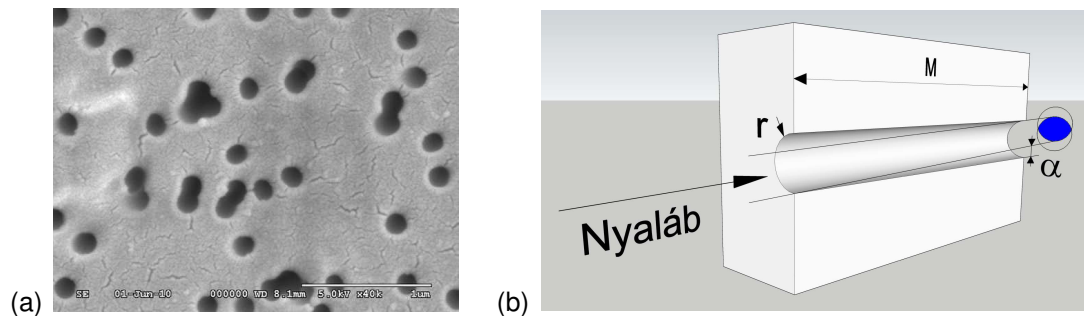
Alumínium-oxid nanokapillárisok irányeloszlását határoztam meg STIM módszerrel. Igazoltam, hogy egy-egy doménon belül a kapillárisok a $15\ \mu\text{m}$ -es mélységig végig párhuzamosak, a feltételezéseknek megfelelően. A mintát elforgatva megállapítottam, hogy a szomszédos domének kapillárisirányai között $\sim 2^\circ$ eltérés van [B4].

Polikarbonát nanokapillárisok

A munka folytatásaként – hasonló módon – polikarbonát membránban véletlenül elhelyezkedő nanokapillárisok irányeloszlását határoztam meg.

A polikarbonát fóliában nagyenergiás nehézionok által okozott roncsolás nyomait maratják kémiailag, így állítják elő ipari mennyiségben a nanopórusokkal perforált fóliákat. A besugárzási paraméterek határozzák meg a porozitást (azaz a kapillárisok sűrűségét), és a szögyszórást. A csatornák átmérője és alakja a kémiai marás paramétereitől függ.

Az ilyen polikarbonát (vagy más anyagú) fóliák kereskedelmi forgalomban kaphatók, több cég is gyárt ilyen fóliákat. Louvain-la-Neuve-ben, Belgiumban az egyetem ciklotron laboratóriumában spin-off céget hoztak létre erre a célra. Ugyanis a tudományos célú felhasználáson kívül nagy mennyiségben is van kereslet az ilyen nanopórusos fóliákra. Az elsődleges felhasználási területük a csomagolástechnika és szűrőként való alkalmazásuk [53], [54]. Továbbá, a környezetkutatásban légköri aeroszolok gyűjtésére is használják mintavevőként [55].

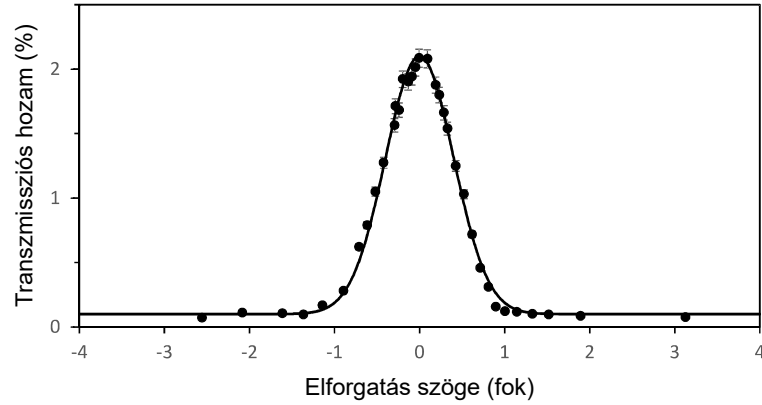


30. ábra. (a) A polikarbonát minta tipikus SEM fényképe. A kapillárisok átfedése határt szab az elérhető maximális porozitásnak. (b) Egy α szöggel elforgatott egyedi kapilláris sematikus ábrája. A transzmisszió a jelölt két ív vetületének metszeteként számítható (kék színnel jelölve).

A mérésekhez kétféle különböző Millipore IsoporeTM [56] mintát használtunk. A minta geometriájának névleges értékei a következők: 220 nm kapillaris átmérő, 5–20% porozitás (a lyukak területe a teljes területhez viszonyítva) és 7–22 μm membrán vastagság. A SEM elektronmikroszkópos mérések alapján ezek az értékek kissé eltérőnek adódtak: $172,1 \pm 2,9$ nm kapillaris átmérő, $9,5 \pm 1,1\%$ porozitás. A profilométeres mérések szerint a membrán vastagsága $29,8 \pm 2,5$ μm . Egy tipikus elektronmikroszkópos fénykép a 30.(a) ábrán látható. Bár a minta porozitása nem túl nagy, mégis számos átfedő lyuk figyelhető meg a véletlenszerű eloszlás miatt. (Az előző munkában használt – az önszerveződő folyamat során kémiai módon kialakított – Al_2O_3 nanokapillarisok esetén a rendezett eloszlás miatt átfedések nincsenek, mégis lényegesen nagyobb a porozitás [B4].)

A STIM méréseket ebben az esetben is az Atomki pásztató ionmikroszkopjában végeztem [S1]. A besugárzási paraméterek az előző munkában használt értékekkel azonosak voltak. Egy Hamamatsu [57] S1223 típusú p-i-n fotodiódát használtam részecske-detektorként [58]. A detektor üveg fedelét eltávolítottam, így alkalmassá téve azt az ionok detektálására. A detektort a céltárgy mögött a nyaláb tengelyében helyeztem el, így a nanokapillarisokon egyenesen áthaladó protonok éppen a detektorba érkeztek. A mérések előtt és után a detektorral ellenőriztem a nyaláb energiaszélességét, ami $\sim 12,6$ keV volt, ezzel igazolva, hogy a detektor energiafeloldása a mérések során nem romlott észrevehető mértékben. Ez az érték a detektor pillanatnyi állapotára jellemző, mert a nyaláb energiaszélessége ehhez viszonyítva elhanyagolható volt.

Azok az ionok, amelyek ütközés nélkül átrepültek a kapillárison nem szenvedtek energiavesztést (a kísérleti elrendezés ugyanaz, mint a 27.(a) ábrán, de itt az egyedi kapillarisok irányai véletlenszerűek). A bombázó ionok energiájának megfelelő csúcs a spektrumban – az előző esethez hasonlóan most is – a legnagyobb energiánál jelenik meg. Más ionok – amelyek nem egy nanokapillaris tengelyével koaxiálisan haladnak – a fólia anyagában lassulnak, így a spektrumban a kisebb energiáknál jelennek meg. A maximális energiavesztés akkor keletkezik, amikor egy ion egyetlen kapillarist sem metsz, hanem csak a fólia tömbi anyagán halad vé-



31. ábra. A transzmisszió hozam (E_0 / össz-beütésszám) szögszórása $0,95^\circ$ FWHM.

gig. Ez a maximális energiavesztés a SRIM szimuláció [19] alapján 624 keV $30 \mu\text{m}$ vastag tömbi polikarbonát anyagban. A 2 MeV-es energiájú protonok hatótávolsága tömbi polikarbonátban $65 \mu\text{m}$. Mivel az előre- és viaszóródó ionok száma elhanyagolható, így szinte minden ion eléri a minta mögött elhelyezett detektort. A STIM spektrumból az is látható volt, hogy a legnagyobb energiavesztés (azaz a detektált legkisebb energia) jóval a detektor és a jelfeldolgozó elektronika kisenergiás küszöbértéke fölött volt. Ezért a spektrumban az össz-beütésszám arányos a bejövő ionok számával, erre tudjuk normálni az E_0 csúcs területét. A STIM spektrum a 27.(b) ábrához hasonló.

Az alábbi analitikus formulával megadható az elforgatott szögű kapilláris transzmissziós hozama (átlátszósága), ezt $T(\alpha, r, M)$ jelöli:

$$T(\alpha, r, M) = r^2 \cdot \cos \alpha \cdot [2 \cdot \arccos A - \sin(2 \cdot \arccos A)]$$

$$A = \frac{M \cdot \tan \alpha}{2 \cdot r}$$

ahol α az elforgatás szöge (radiánban), r a kapilláris sugara (μm), és M a membrán vastagsága (μm). A szemantik ábra a 30.(b) ábrán látható.

Ha a mintában a kapillárisok nem tökéletesen párhuzamosak, akkor fenti megfontolásból adódó függvény alakjától különböző lesz a transzmissziós hozam. A minta elforgatásával különböző kapillárisok lesznek a protonnyaláb irányával párhuzamosak, így a transzmissziós hozam szögfüggésében kiszélesedés várható. A minta átlátszóságát az E_0 csúcs területének és az össz-beütésszámnak (azaz az összes beérkező protonok számának) a hányadosa adja meg. Ez a hányados a minta normálisa és a nyaláb tengelye által bezárt szög függvényében a 31. ábrán látható. A mérési adatokat egy Gauss-függvénnyel illesztettem.

Az E_0 energiaablak szélességét különböző értékekre állítottam be, és a transzmissziós hozam szögfüggését ezekkel vizsgáltam. Amikor az energiaablak szélessége túl nagy volt, – azaz belevettem olyan ionokat is, amelyek veszítettek valamennyi energiát – a szögszórás nagyobbak adódott. Az energiaablak szélességének csökken-

tésével a hozam szögfüggésének szélessége egy platót ért el. Az optimális E_0 értéknek azt választottam, ahol a hozam éppen elérte a platót és a beütésszám maximális volt, ez a detektor energiafeloldásával azonos értéknek adódott.

Az átlátszóság szögeloszlásának a szélessége két különböző minta esetén $0,95^\circ$ és $1,04^\circ$ FWHM értékűnek adódtak. Ez az érték – ami a minta jóságának tekinthető – a kapillárisok tengelyeinek szögszórása és egy egyedi kapilláris nyílásszögének konvolúciója (átfedő kapillárisok hatását figyelembe véve még ennél is rosszabb, ami nem elhanyagolható ezért a további analízist jelentősen megnehezíti, sőt ellehetetleníti). Elhanyagolható mennyiségű átfedést tartalmazó minták esetében a kapillárisok tengelyeinek szögeloszlására kvantitatív információ nyerhető.

A geometriából számított $0,3^\circ$ teljes nyílásszög $0,95^\circ$ -ra történő kiszélesedését a nyaláb divergenciája nem okozhatja, mert a STIM méréshez használt nyalábdivergencia $<0,07^\circ$ (teljes nyílásszög).

A kapillárisok szögeloszlásának mérése hasznos információt ad a kapilláris készítéshez, a nehézion besugárzások párhuzamosságának optimalizálásához. A legtöbb alkalmazás esetén ez az információ nem lényeges (pl. csomagolóanyag gyártás), de ha ugyanezeket a mintákat ionterelés vizsgálatára szeretnénk használni, akkor a párhuzamosság ismerete elengedhetetlen.

A minták vizsgálatához mikronyalábot használtunk, így megfigyelhettük volna az esetleges laterális inhomogenitásokat mikron skálán, de a minták porozitása ebben a mérettartományban egyenletesnek bizonyult. Ez az eredmény összhangban van a széles nyalábméretű nehézion besugárzással, ami a filterek készítésének legelterjedtebb módja. Tehát a kapillárisok szögszórása a mintában egyenletesen van elosztva. (Az előző munkában megvizsgált Al_2O_3 önszerveződő módon kialakított nanokapilláris rendszer ugyanilyen méretskálán inhomogén, viszont egy-egy domén-en belül szigorúan homogén volt.)

Az egyik vizsgált mintában a kapillárisok szögeloszlásának középértéke $1,5^\circ$ eltérést mutatott a minta normálisához képest. A másik minta esetén a szögeloszlás a minta normálisára szimmetrikusan helyezkedett el. Ez azt jelenti, hogy a nehézion besugárzás jelentős inhomogenitásokat képes kialakítani a szögeloszlásban, főleg nagy méretskálán. (Pl. ha egy 60 cm széles fólia mintán a nyalábot pásztázzák a céltárgytól 1–2 m távol elhelyezett elektrosztatikus vagy mágneses eltérítéssel, akkor a minta közepénél merőleges lesz a beeső nyaláb – és így a kimart kapillárisok is –, de a minta széle közelében akár $10\text{--}20^\circ$ is lehet a nyaláb beesési szöge. Tehát a készített kapillárisok szögeloszlásának középértéke nem lesz merőleges a minta felületére.)

Polikarbonát membránban nehézion-nyomok kimarásával létrehozott véletlenszerűen elhelyezkedő nanokapillárisok irányeloszlását határozta meg. Megmutatta, hogy az egyedi kapillárisok irányeloszlása a nanokapillárisok geometriai nyílásszögénél (ami kb. $0,3^\circ$) – a nehézionok besugárzási paramétereivel korrelálva – lényegesen nagyobb szórást mutat (kb. $0,95^\circ$) [B5].

3. PBW – metodika és rezisztanyagok fejlesztése

Kivonat

A mikroszkonda első alkalmazási területe az ionnyaláb-analitika volt. Ezt követően – a Szingapúri Egyetemen töltött posztdoktori munkám során – megismerkedtem a kifejlesztés alatt álló protonnyalábos mikromegmunkálással (az angol nyelvű szakirodalomban jelenleg elterjedt neve Proton Beam Writing, illetve P-beam writing, PBW), sőt ennek kezdeti stádiumában a módszerfejlesztésben is részt vettem.

Módszert dolgoztam ki kis töltésmennyiség mérésére. Megmutattam, hogy a szekunderelektron-hozam – adott anyag és sima felület esetén – arányos a protonnyaláb által bevitt töltéssel, így használható a töltés monitorozására [C1].

Elsőként készítettem nagyfelbontású fém mikrobélyegzőket PBW módszerrel létrehozott polimer mikrostruktúrákból nikkell- és rézgalvanizálással. Demonstráltam a sorozatgyártás lehetőségét későbbi innovatív alkalmazásokhoz [C2].

Új típusú, javított felületi minőségű tesztmintát – kalibrált rácsállandójú öntartó rézrácsot – készítettem a protonnyaláb méretének meghatározására. Ezzel a mikro- és nanonyalábok mérete is a korábbiaknál lényegesen jobb (~100nm nagyságrendű) pontossággal meghatározható [C3].

Az Atomki Radon csoportjában évtizedes hagyományai voltak a szilárdtest nyomdetektorok használatának. Ebből kiindulva merült fel az ötlet, ha a CR-39 nyomdetektor egyedi alfa-részecskéket képes detektálni (a roncsolt nyom megfelelő kémiai eljárással kimaratható), akkor érdemes megvizsgálni, hogy milyen roncsolást visznek be a protonok az anyagba, és ez is kimaratható-e. Első lépésként igazoltuk a módszer működőképességét (eközben a már bevált PMMA mintákon is ellenőriztük a működést, és egy másik új anyagot – a fényérzékeny Foturan üveget – is sikeresen teszteltük) [C4]. Ezt követően meghatároztuk a nyomdetektoranyag dóziszérkenységét [C5], majd CO₂ kezeléssel ezt az érzékenységet meg is tudtuk növelni [C6].

3.1. A protonnyalábos írás alapjai

A protonnyalábos mikromegmunkálás, illetve írás [Proton Beam (P-beam) Writing, PBW] egy direkt írásos litográfiás eljárás, amelyben fókuszált MeV energiájú protonokat (vagy nehezebb ionokat) pásztázunk egy alkalmas anyagon (ezt a litográfiában rezisztnek nevezik), majd az ionok által létrehozott primer roncsolási képet kémiai eljárással előhívjuk.

Bár az első cikk még az Oxfordi Egyetemről jött ki 1993-ban [59], ott nem foglalkoztak tovább ezzel a témával. A PBW módszert a Szingapúri Egyetem Ionnyaláb Alkalmazások Központjában fejlesztették ki [60], [61], [62], [5]. Érdekes megjegyezni, hogy míg 1997-ben és 1998-ban „Deep Ion Beam Lithography” néven említik, ez kissé hosszú név volt, és a rövidítése sem egyszerű: a DIBL elnevezés ezért nem vált népszerűvé. Ebben az időszakban mindössze két cikk jelent meg ebben a témában. 1999-ben kezdték használni a „Proton Beam Micromachining (PBM)” kifejezést, ez több éven át használatos volt, a teljes név és a rövidítés is könnyen megjegyezhető.

A szingapúri posztdoktori állás után hazatérve 2002-től egy ifjúsági OTKA projekt keretében meghonosítottam Magyarországon a „protonnyalábos mikromegmunkálás” módszert, és egy Fizikai Szemle cikket is írtam erről [S14].

Majd kb. 2003-tól az angol szakirodalomban fokozatosan áttértek a „Proton Beam Writing / P-beam Writing (PBW)” kifejezésre. Ennek oka elsősorban az volt, hogy hasonló legyen az iparban már ismertté vált E-beam Writing kifejezésre, ezzel is próbálva nyitni az ipari alkalmazások felé. Egy másik oka pedig az, hogy egyre több alkalmazás esetében szükségesek a mikrostruktúrákon nanométeres méretekkel jellemezhető részletek, ezért nanonyalábra van igény. Külföldi és hazai fejlesztések és alkalmazások sora bizonyítja a módszer hasznosságát és hatékonyságát. Mivel az utóbbi időben itthon is megvalósult a nanonyaláb, így magyarul is célszerű bevezetni a „protonnyalábos írás” kifejezést.

A nanotechnológia gyors fejlődése és a 100 nm-nél kisebb méretű struktúrák készítésének nehézsége együttesen érdeklődést teremtettek a nagyfeloldású litográfiai technológiák fejlesztése iránt. A jelenlegi mikroelektronikai termelési módszerek gyakorlatilag mind 2-dimenziósak, így megfelelnek a mikroelektronikában jellemző 2-dimenziós rendszereknek. Mivel a félvezető eszközök mérete egyre csökken, közben mozgó alkatrészeket is integrálnak a chipékbe, várhatóan meg fog nőni az érdeklődés a mikroelektromechanikai rendszerek (MicroElectroMechanical Systems, MEMS) és a nanoelektromechanikai rendszerek (NanoElectroMechanical Systems, NEMS) iránt. Nanométeres részleteket tartalmazó nagy oldalarányú 3-dimenziós mikrostruktúrák felé szintén növekvő az érdeklődés (pl. optoelektronikai eszközök). Mikrofluidikai csatornákat tartalmazó biochipek is fontos szerephez juthatnak.

Az új generációs litográfiai módszerek (Next-generation lithographies, NGL) fejlesztése aktívan folyik annak érdekében, hogy átvegyék a sikeres optikai litográfia szerepét. Mivel a tipikus méretek már jóval 100 nm alatt vannak, a diffrakciós határ elérése egyre jobban megnehezíti – végül szükségszerűen ellehetetleníti – a Moore-törvény [63] követését, bár az optikai litográfiát egyre kisebb hullámhosszú fotonokkal végzik (pl. extrém UV). Az NGL módszerek fejlesztése az ipari termelésre koncentrál, így a maszkos litográfiai módszereket (ahol a primer sugárzást nagy területű maszkon keresztül levilágítják a rezisztanyagra) lehet legjobb hatásokkal használni olcsó tömegtermelésre. Ennek ellenére a direkt írásos módszerek (ahol a primer sugárzást egy kis területre fókuszálják és pásztázzák a reziszt felületén) felléptek lehetséges alternatívaként a maszkos módszerek mellett [64]. Bár a direkt írásos technológiák sebességét korábban túl lassúnak ítélték meg, ezek a komoly módszerek jelentős szerepet kaphatnak bélyegzők vagy öntőformák, moldok készítésénél, mert ezek nanoimprinting módszerrel átvihetők sorozatgyártásba [65], [66].

A nanomegmunkálásra használható direkt írásos módszerek nanométeres méretűre fókuszált töltőttrészecske nyalábot, pl. elektronokat (electron beam lithography, EBL) vagy lassú nehézionokat (focussed ion beam technology, FIB) használnak. Mindkét technológia nagyon sikeresnek bizonyult, így széles körben elterjedt, és kereskedelmi forgalomban kaphatóak hozzájuk célberendezések. Az EBL módszernél a primer kölcsönhatás az elektronnyaláb és az anyag között egy elektron-elektron ütközés, ami az elektronok többszörös nagy-szögű szórását okozza, így létrehozva a klasszikus „körte-alakú” ionizációs térfogatot az elektronnyaláb anyagba való belépé-

si pontja körül. Az elektronok trajektóriáit Monte-Carlo-módszerekkel lehet szimulálni [67]. Például egy fókuszált 50 keV energiájú elektronnyaláb PMMA [poli(metilmetakrilát), plexiüveg] anyagba való behatolási mélysége 40 μm , míg a laterális kiszélesedése 20 μm . Ezért 100 nm-nél kisebb méretűre fókuszált elektronnyalábot csak nagyon vékony rezisztanyagban lehet használni, bár további lépésekkel – pl. reaktív ionmarással – nagy oldalarányú struktúrák is készíthetők. A FIB módszernél az elsődleges kölcsönhatási mechanizmus az impulzusátadás a lassan mozgó beeső nehézionok és az anyag felületi atomjai között. A felületi atomok átrendeződnek, ami kémiai és szerkezeti változásokat valamint porlasztást okoz. A porlasztási mechanizmus is modellezhető Monte-Carlo-módszerekkel [19]. A porlasztási sebesség 30 keV energiájú Ga ionokat használva $\sim 1\text{--}10$ atom sokféle különböző anyag típus esetén [68]. Ez a módszer viszonylag lassú az EBL íráshoz képest, ezért a FIB általában csak speciális alkalmazásokhoz használható.

A LIGA (Lithographie, Galvanoformung, Abformung (német); litográfia, galvanizálás, öntés) [69] módszer az EBL és a FIB módszereknél kevésbé elterjedt. Ez esetben a rezisztanyagot maszkon keresztül röntgensugárzással világítják le. A fotonok által leadott energia a mélységgel exponenciálisan csökken. Nagy mélység érhető el, de besugárzandó dózis tervezésénél figyelembe kell venni, hogy a felület ne exponálódjon túl, viszont a kívánt mélységig (a reziszt réteg aljáig) legyen elegendő a leadott dózis. Nagy kontrasztot biztosító precíziós maszkra van szükség, ez általában nagyrendszámú anyagból készül és nagy oldalarányú struktúrákat tartalmaz. Ilyen maszkok készítésére a FIB és a PBW is alkalmas lehet.

Lézeres mikromegmunkálás esetén a tipikus megmunkálható méretek: 1 μm – 1 mm, minta vastagság: <1 mm. Lyukasztás esetén a belépő átmérő nagyobb, mint a kilépő (kúp félszög 3–5°). A lézeres megmunkálás felbontóképessége függ a hullámhossztól (a legkisebb elkészíthető lyuk, vagy vágás „átmérője” a hullámhossz kb. kétszerese). Rövid hullámhosszúságú és rövid impulzusú lézerekkel elérhető az 1 μm -es megmunkálási méret. Maszk levilágításra vagy direkt írásra is használható, ezekben az esetekben különböző fókuszálás szükséges.

A MeV energiájú protonok fókuszálásával a 100 nm alatti szint elérése [A1] értelmet adott az új direkt írásos nanomegmunkálási módszer (a PBW) kifejlesztésének. A PBW módszer gyakorlatilag az EBL módszerrel analóg, de elektronok helyett protonokat használ.

MeV energiájú protonok fizikai tulajdonságai

Egy MeV energiájú proton rezisztanyagban bejárt útja függ az atomi elektronokkal és az anyag atommagjaival való kölcsönhatástól is. A pálya nagy részén a proton-elektron kölcsönhatásnak legnagyobb a valószínűsége. A nukleáris szóródás valószínűsége néhány nagyságrenddel kisebb, így az atomi ütközések csak nagyon kis mértékben tudják a trajektóriát módosítani [19]. Mivel a protonok tömege mintegy 1800-szorosa az elektronok tömegének, így a proton-elektron ütközések nem tudják jelentősen eltéríteni a protonokat az egyenes pályától. Továbbá, az impulzusuk jelentősen különböző, így minden proton-elektron ütközésben csak kismértékű az energiaátadás, ezért több ezer ütközés történik, mielőtt a proton lelassul és megáll.

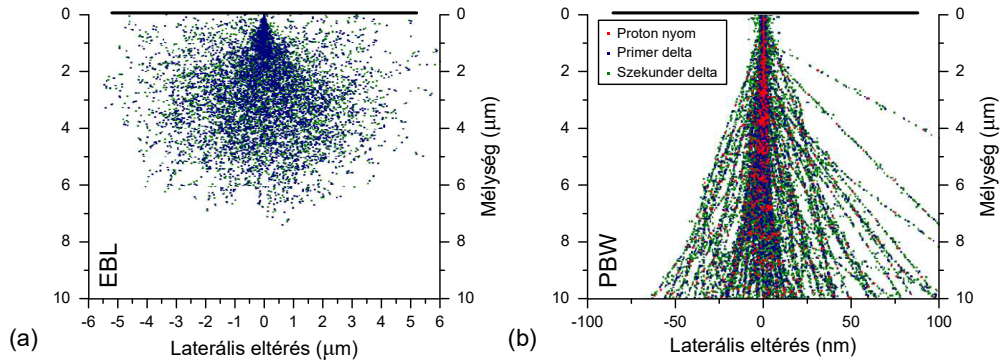
Ezek miatt ebben az energiatartományban (kb. 500 keV – 3 MeV között) a protonok képesek 10–100 μm mélységig bejutni az anyagba, míg a felület közelében csupán minimális mértékű az okozott roncsolás. Ráadásul a diffrakciós effektusok sem jelentenek problémát, mivel az ilyen energiájú protonok hullámhossza 10^{-5} nm nagyságrendben van.

A protonok és az anyag közti kölcsönhatások a következőképpen foglalhatók össze:

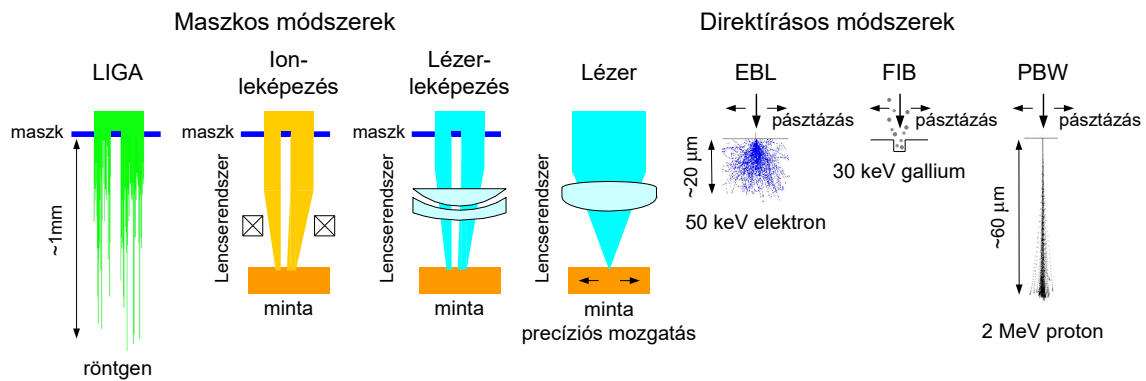
1. A protonnyaláb egyenes vonal mentén halad, kivéve a pálya végén, ahol az atomi ütközések miatt kiszélesedik. Ez lehetővé teszi nagy oldalarányú 3-dimenziós struktúrák előállítását. Elektronnyalábos litográfiával (EBL) ez nem lehetséges, mert az elektronnyaláb – bár nagyon jól fókuszálható – nagymértékben szóródik a rezisztanyagba való belépéskor.
2. A protonok által leadott energia a mélység függvényében lassan változik, kivéve a pálya végén (Bragg csúcs), ahol lényegesen nagyobb energialeadás történik. Ez a tulajdonság biztosítja, hogy a mélység mentén egyenletes roncsoló hatás jöjjön létre. Optikai litográfiás módszereknél (UV, röntgen stb.) ezzel szemben a leadott energia a mélységgel exponenciálisan csökken, így vastag rezisztanyagok esetén felmerül az a probléma, hogy a felületi réteg már túlexponált lesz, míg a mélyebben lévő anyag még nem kapott elegendő besugárzást.
3. A protonok anyagba való behatolási mélysége jól definiált, és ez a protonnyaláb energiájával hangolható. Ez a különleges tulajdonság lehetővé teszi többszintű struktúrák létrehozását egy réteg rezisztanyagban.
4. A protonok hatására csak elhanyagolható mennyiségű nagyenergiás szekunder elektron keletkezik, amelyek nemkívánatos módon exponálnak a rezisztanyagot (ezt nevezzük közelhatásnak, proximity-effektusnak). Ezzel ellentétben az EBL módszernél jelentősebb az olyan energiájú elektronok mennyisége, amelyek mikronos nagyságrendű közelhatást okozhatnak. A protontrajektóriák és energiaveszteségi profilok jól leírhatók Monte-Carlo-szimulációkkal, pl. a SRIM programmal [19], az EBL folyamatai pedig a Casino programmal [67]. A protonok által indukált szekunder elektronok Hansen–Kobach–Stolterfoht-modell szerinti szimulációja [70] mutatja a proton- és elektronnyalábok természetét a közelhatás és a behatolási profilok tekintetében. A δ -szimulátor programokkal készített számítások megmutatták, hogy litográfiás célokra protonokat használva a leadott energia a protonnyaláb trajektóriája mentén koncentrálódik (ld. 32. ábra). Az ábrán az is megfigyelhető, hogy a protonnyaláb behatolásának első 2 μm mélységéig az energialeadási profil 10 nm átmérőn belül marad, ami több nagyságrenddel jobb, mint ugyanez elektronok esetén.

A 33. ábrán különböző mikromegmunkálási módszerek összehasonlítása látható. Lézerekkel és ionokkal direktírásra és maszk leképezésére is van lehetőség. Ezekben az esetekben természetesen különböző módú fókuszálás szükséges.

Rezisztanyag lehet bármi, amiben a MeV energiájú protonnyaláb olyan – fizikai vagy kémiai – változást okoz, ami egy megfelelő előhívási eljárással mikrostruktúrák-ká alakítható. Pozitív reziszt esetén a nyaláb által érintett térfogatot eltávolítjuk,



32. ábra. (a) δ -szimulációs profilok ezer 20 keV-es elektronra, amelyek 10 μm vastag PMMA rétegbe hatolnak be (a primer elektronok kékekkel, a szekunder elektronok zöld színnel ábrázolva). (b) δ -szimulációs profilok ezer 2 MeV-es protonra, amelyek szintén 10 μm vastag PMMA rétegbe hatolnak be (a primer protonok pirossal, a szekunder elektronok kék és zöld színnel ábrázolva). Megjegyzés: a két esetben az X skála mértéke jelentősen különböző.

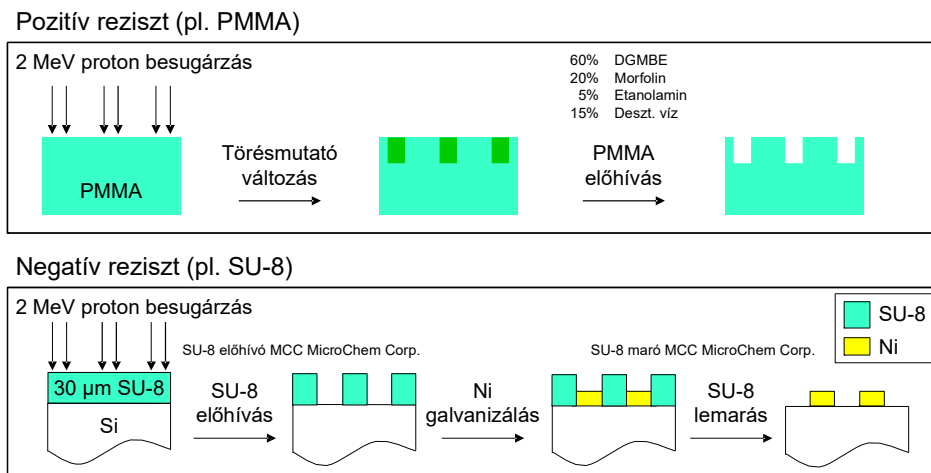


33. ábra. Különböző litográfiai módszerek összehasonlítása.

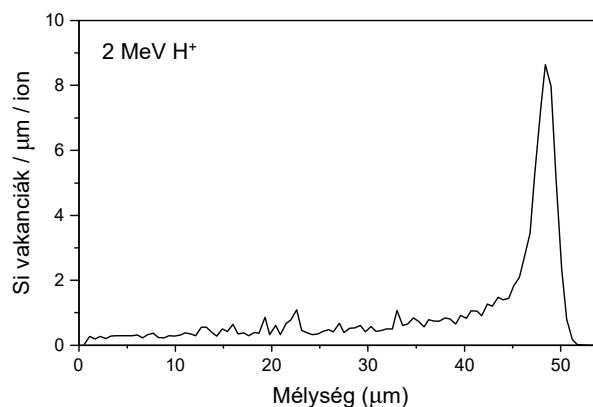
negatív reziszt esetén pedig ez marad meg. Polimerek esetén (pl. PMMA) láncaprózódás történik, az előhívás során a kisebb tömegű – eltoredezett – molekulákat kioldja az előhívószer. Polimer negatív rezisztokban (pl. SU-8) az anyag szerkezete térhálósodik, ezért az előhívószer az érintetlen térfogatot tudja kimarni. A negatív rezisztokat hátlaton vékony réteggé használják. További lehetőség a galvanizálás, amivel a polimer struktúra inverze fémből is elkészíthető, így bélyegzőként használható. Ezeket a folyamatokat a kétféle rezisztanyag-típus esetén a 34. ábra szemlélteti.

Az elektronnyalábos írásnál a primer és szekunder elektronok láncaprózódást vagy térhálósodást okoznak, míg a protonnyalábos írásnál a protonok által indukált szekunder elektronok okozzák ugyanezeket a hatásokat. A szükséges protonfluens 30–150 nC/mm² között változik a rezisztanyagtól függően [71], ezek az értékek kb 80–100-szor kisebbek az EBL-hez szükséges értékeknél [72], [73], [74].

A protonok egy további olyan tulajdonsággal is rendelkeznek, ami az elektronokra nem jellemző: a céltárgy atomjait képesek elmozdítani, így kristályos anyagoknak



34. ábra. (a) Pozitív polimer rezisztanyagok (pl. PMMA) esetén a láncaprózódás miatt ki lehet maratni a 3D mikrostruktúrákat. (b) Negatív reziszt (pl. SU-8) esetén térhálósodik az anyag, így a besugárzatlan térfogat marad ki.



35. ábra. 2 MeV energiájú protonok által létrehozott vakancia profil szilíciumban SRIM számítások alapján.

meg tudják változtatni az elektromos tulajdonságait. Például egy 2 MeV energiájú proton szilíciumba behatolva fokozatosan elveszíti az energiáját, és végül $\sim 48 \mu\text{m}$ mélységben megáll. A szilíciumban a protonpálya mentén vakanciák keletkeznek, de a legtöbb roncsolás a pálya végén történik. A SRIM számítások szerint (ld. 35. ábra), 2 MeV energiájú protonokból 5×10^{15} proton/cm² fluens $\sim 10^{19}$ vakancia/cm³ roncsolást okoz a felület közelében, ami a pálya végén élesen megnő 10^{20} vakancia/cm³ értékre. Ez a tulajdonság lehetővé teszi p-típusú tömbi szilíciumban 3-dimenziós struktúrák készítését, valamint megváltoztatja a porózus szilícium fényemittáló képességét. Továbbá a pálya végén okozott roncsolás megnövekedését kihasználva a PBW módszerrel (protonokkal vagy nehéz ionokkal) lehetséges törésmutató változást okozni pl. polimerekben vagy üvegekben (pl. Er³⁺-Yb³⁺ szennyezett foszfát üvegekben), így eltemetett hullámvezetők is készíthetők [S9].

A szilíciumba implantált protonok (vagy héliumionok) által okozott roncsolás kristályhibákat okoz, ami lokálisan megnöveli a szilícium ellenállását [75]. Ha a hibahelyek sűrűsége elér egy bizonyos szintet, a roncsolt térfogatban teljesen megszűnik az áram, a besugárzatlan helyeken pedig az elektrokémiai marás áram jelenléte mellett zajlik. Így tehát a besugárzott területen a fluenssel szabályozható, hogy hol ne alakuljon porózussá a szilícium [76], [77], [78]. A helyileg megnövelt ellenállást kihasználhatjuk nagy oldalarányú struktúrák készítésére, ha a maradék kristályos szilícium körül lemaratjuk a porózussá vált szilíciumot [S2].

A PBW módszer az EBL-hez és a FIB-hez viszonyítva még mindig kevésbé kidolgozott (ez még inkább érvényes volt a munkám ezen időszakában a 2000-es évek elején). Ennek ellenére a PBW módszer már alkalmas nagy oldalarányú struktúrák készítésére különböző rezisztanyagokban – jelenleg a Szingapúri Egyetemen már elérhető – akár 10 nm laterális méretéig. Az így elkészített struktúrák sima és merőleges oldalfalakkal rendelkeznek, a megmunkálás mélysége a protonenergiával hangolható. A minimális közelhatási effektusok miatt a PBW módszerrel lehetséges sűrűn egymás mellett álló struktúrák kialakítása is.

A protonnyalábos írás tehát egy olyan új mikrolitográfias módszer, amelynek hatalmas potenciális lehetőségei vannak. Mind az elméleti számítások, mind a kísérleti eredmények igazolják, hogy 10 nm nagyságrendű struktúrák létrehozása lehetséges. A MeV energiájú protonok egyik legfontosabb fizikai jellemzője – nagy behatolási mélység kis laterális szóródással – azt eredményezi, hogy a PBW módszerrel lehetséges valódi 3-dimenziós nanoskálájú megmunkálás. A protonok lényegesen nagyobb tömegűek az elektronoknál, ezért PBW során nem keletkezik közelhatás, így az EBL-nél jobb lehetőség van PBW nanostruktúrák készítésére. A PBW technika továbbfejlesztése ezért célszerű: ehhez elsősorban nagyobb fényességű ionforrások és stabilabb részecskegyorsítók szükségesek. Egy felhasználóbarát, kereskedelmi forgalomban kapható berendezés hiánya akadályozza a PBW módszer szélesebb körű elterjedését, így a potenciális alkalmazási lehetőségek kihasználása is várat magára.

3.2. Hatékony töltésmonitorozás

A minta és a felületére beeső ionnyaláb kölcsönhatása számos különböző jelet generál, amelyek felhasználásával általában ionnyaláb-analitika végezhető. Ezek a jelek többek között: a visszaszórt ionok (RBS) [2]; és karakterisztikus röntgensugárzás (PIXE) [1]. Mind a visszaszórtion-, mind a röntgen-hozam egyenesen arányos a beeső ionfluenssel (ion/cm² vagy nC/mm²), az arányossági tényező egy kölcsönhatási hatáskeresztmetszet, továbbá geometriai paraméterek és detektor-hatásfok. Mivel mindezek a paraméterek tipikusan jól ismertek egy adott anyagra és geometriai elrendezésre, a mintára beeső töltés mennyisége ezek alapján pontosan monitorozható.

A megfelelő töltésmennyiség ellenőrzésére tipikusan az RBS-t alkalmazzák. Ennek azonban vannak korlátai, különösen az olyan érzékeny rezisztanyagok esetén, mint az SU-8. A visszaszórási események aránylag kis hatásfoka miatt a töltés normalizálás pixelenként nem lehetséges. A szekunderelektron-hozam az SU-8 anyag esetén legalább egy nagyságrenddel nagyobb, mint az RBS hozam. Egy megfelelő

elektron-detektor használatával gyakorlatilag egyedi ionok hatását detektálhatjuk, így a mintára érkező ionfluens mennyiségét pontosan monitorozhatjuk.

Általában háromféle nyalábpásztázási-módszert használunk a rezisztanyagokon a mintázat kialakításához. Erre egy szingapúri fejlesztésű LabView alapú szoftvert [79] használtunk a cikk írásának idején. Az első – és leggyakrabban alkalmazott – módszer esetén egy teljes mintázatot többször végigpásztázunk addig, amíg a tervezett fluenst elérjük. Ezt a módszert *ábra-normalizálásnak* nevezzük. Annak érdekében, hogy egyenletes legyen a rezisztanyag expozíciója a nyalábintenzitás-fluktuációkat kiátlagoljuk a sokszori végigpásztázás során. Ennek a módszernek egy hátránya azonban az, hogy a nyalábot gyakran ki kell kapcsolni a különböző egybefüggő alakzatok között. Ezt a hátrányt kiküszöbölhetjük az *alak-normalizálás* módszerrel. Ekkor a teljes területen belül az ábrán előforduló önálló egybefüggő területeket pásztázunk többször, addig amíg a tervezett fluenst elérjük. Ez a módszer biztosítja, hogy minden önálló alakzat között pontosan csak egyszer kell kikapcsolni a nyalábot, így a fentebb leírt ábra-normalizáláshoz képest időt nyerünk. Sajnos azonban ez a módszer is többszöri pásztázást igényel annak érdekében, hogy a nyaláb intenzitás fluktuációkat kiátlagoljuk. Mind az ábra-, mind pedig az alak-normalizáláshoz a pásztázási időállandó definiálja a pásztázási sebességet, így az expozícióhoz szükséges pásztázási körök számát is. Korábbi kísérleti tapasztalatok alapján ismert, hogy a gyors pásztázási sebességek esetén ($<200 \mu\text{s}/\text{pixel}$, $400 \mu\text{m} \times 400 \mu\text{m}$ területen, 1024×1024 pixel feloldás mellett) az exponált ábrák torzulnak, ennek oka a pásztázó mágneses tekercekekben fellépő hiszterézis. A pásztázási sebesség probléma minimálisra csökkenthető a *pixel-normalizálás* módszerrel. Ennek során a pásztázandó mintázat minden egyes pixelén annyi ideig tartjuk egy helyben a nyalábot, amíg a kívánt töltést begyűjtjük. Ennek a módszernek az előnye, hogy minden pixelt csak egyszer kell besugározni, ezért a pixelen töltött időt kizárólag a nyaláb árama határozza meg. Viszont ahhoz, hogy pixelenként tudjuk elvégezni a normalizálást, a töltés méréshez az RBS-nél érzékenyebb analitikai módszerre van szükség.

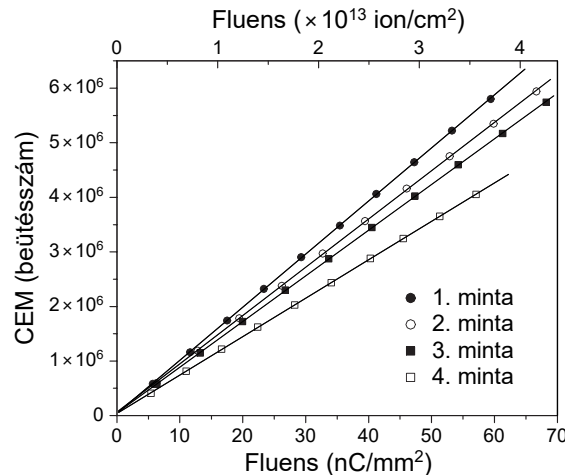
A jelen munka célja az volt, hogy megértsük a szekunderelektron-emisszió viselkedését az SU-8 rétegvastagság, a nyalábenergia, és a fém közbenső réteg függvényében. Ezt az információt később arra használjuk, hogy biztosítsuk a megbízható töltésnormalizálást a mikromegmunkáláshoz.

A kísérleteket a Szingapúri Egyetemen végeztük. Négy SU-8 mintát vittünk fel centrifugálással szilícium hordozókra. Három minta esetén az SU-8 polimert közvetlenül a szilícium felületére tettük rá 10, 20 és 30 μm vastagságban. Egy minta esetén – amelynél szintén 20 μm volt az SU-8 polimer réteg vastagsága – a szilícium hordozót előzetesen nikkellal porlasztással vezetőszerű felülettel láttuk el (az angol szakirodalomban *seed layer*). A vezetőréteggel ellátott szilícium hordozókat általában későbbi galvanizálási céllal készítik [C2].

A szekunderelektron- és az RBS-jelek monitorozására három detektort használtam. Két felületi záróréteges Si detektort az ionfluens monitorozására építettem be a rendszerbe. Az első detektor a 160° szórási irányban IBM-geometriában működött (ebben a munkában „kis RBS” néven hivatkozom rá, aktív felülete 50 mm^2 , térszöge 62 msr). A második detektor 145° szórási irányban Cornell-geometriában helyezkedett el (ebben a munkában „nagy RBS” néven hivatkozom rá, aktív felülete

300 mm², térszöge 248 msr). Az elektron-detektor egy *Amptektron MD-502 Channel Electron Multiplier (CEM)* volt. Ez a detektor a 110° szórási irányban működött IBM-geometriában közelítőleg 2,5 cm-re a céltárgytól. A CEM detektor előtt egy 3,6 mm átmérőjű kollimátor volt elhelyezve a mérések során.

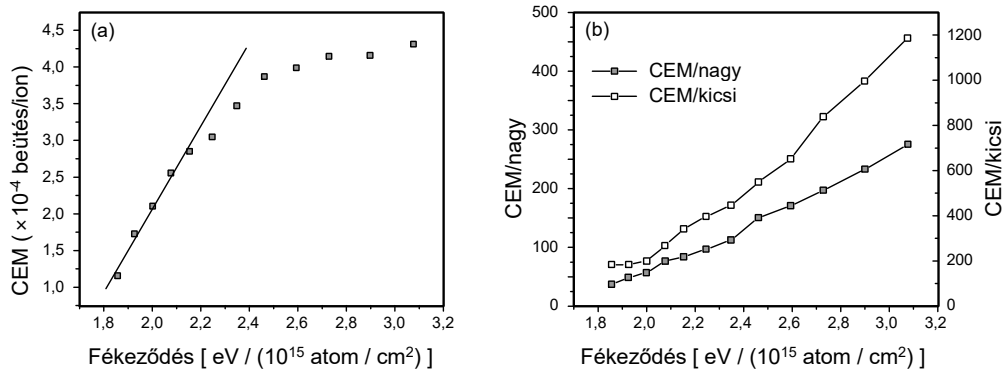
Az első kísérletben azt ellenőriztem, hogy a szekunderelektron-jel lineárisan viselkedik-e az ionfluens, nyalábáram és a nyalábenergia függvényében. A fókuszált protonnyalábot 200 μm × 200 μm területen pásztáztam. A besugárzás közben az RBS- és a szekunderelektron-jeleket térképeztem annak érdekében, hogy megfigyelhessem az esetleges inhomogenitásokat a minta felületén. Ezeket a méréseket 1,0; 1,5; 1,75 és 2,0 MeV protonenergiával végeztem mind a négy mintán. A második kísérletben a 10 μm vastag SU-8 mintát használtam (1. számú minta), annak érdekében, hogy a szekunderelektron-hozamot a protonenergia függvényében vizsgáljam. A nyalábot 200 μm × 200 μm területre defókuszáltam (ezt a kollimátorrésekkel állítottam be), így az előző kísérlettel azonos méretű területet sugároztam be. A nyaláb energiát 1 és 2 MeV között 100 keV lépésekben változtattam. Mindkét kísérlet során az adatokat az OMDAQ adatgyűjtő rendszerrel vettem fel listamódban, így később lehetőségem volt különböző begyűjtött töltésértékekre kivágni az adatokból a megfelelő szeleteket.



36. ábra. Szilícium hordozón lévő SU-8 rétegeken begyűjtött ion-indukált elektronemissziós-hozamok az ionfluens függvényében négy különböző mintán 2 MeV protonenergián. Az 1. számú mintán ~10 μm az SU-8 réteg vastagsága a Si hordozón, a 2. mintán ~20 μm, a 4. mintán ~30 μm. A 3. mintán ~20 μm az SU-8 réteg vastagsága nikkellel bevont Si hordozón. Az elektronemisszió a besugárzott fluens függvényében lineáris volt.

^ A 36. ábra mutatja a CEM beütésszámokat a besugárzott protonfluens függvényében a négy mintán 2 MeV protonenergián. Az ábrán látható lineáris viselkedés ugyanígy megfigyelhető volt 1,75 MeV és 1,5 MeV energián is.

Az 1,0 MeV protonenergia esetén a 2–4 mintákon jelentős mértékű töltődés volt megfigyelhető, ami miatt a válaszfüggvény (azaz a szekunderelektron-hozam a besugárzott fluens függvényében) nem volt lineáris. Ezért ezt itt nem ábrázol-



37. ábra. (a) A protonok által gerjesztett szekunderelektron-hozam függése a fékeződéstől (stopping power). A mérést defókuszált nyalábbal végeztem $200 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ területen, amelyet a kollimátorrés határolt. A görbe nem-lineáris $\sim 1,6 \text{ MeV}$ energia alatt, ami valószínűleg a minta töltődése miatt van így. [A fékeződés skálán $\sim 2,2 \text{ eV}/(10^{15} \text{ atom}/\text{cm}^2)$ -nél nagyobb értékeknek felel meg.] Ezt a mérést az 1. számú mintán végeztem ($10 \mu\text{m}$ SU-8 Si hátlapon). (b) A CEM beütésszám aránya a „nagy” és a „kis” RBS-detektorból kapott jelekhez viszonyítva. Egyértelműen látszik, hogy a fluens normalizációra célszerűbb a szekunder elektronokat használni az RBS helyett.

tam, és levontam azt a következtetést, hogy ilyen kis energián nem használható a szekunderelektron-hozam a töltésnormalizálásra. Ennek oka az volt, hogy a protonok behatolási mélysége kisebb volt a reziszt réteg vastagságánál, tehát nem érték el a Si hordozót. (Az 1 MeV -es protonok SU-8 anyagban $19 \mu\text{m}$ mélységig jutnak el.) Vagyis ez a módszer csak abban az esetben alkalmazható, ha a protonok behatolási mélysége a reziszt rétegen túl, a hordozóban van.

Minden mintán $60\text{--}100 \text{ nC}/\text{mm}^2$ volt a besugárzott fluens, ami 2–3-szor nagyobb érték a tipikusan használatos expozíciós fluensnél. A felvitt töltést azért növeltem meg a szokásos mennyiségén túl, hogy így extrém nagy fluensek esetén is tanulmányozhassam a hosszú besugárzási idő hatását az elektronhozamra. Megfigyeltem, hogy a szerkezeti változások (keresztkötések létrejötte) – amelyek a protonbesugárzás hatására keletkeznek az anyagban – nem befolyásolják a szekunderelektron-hozamot. Az elektronemisszió az 1 MeV -től eltekintve minden esetben lineáris volt. További besugárzásokat végeztem 2 MeV energián egészen nagy ($1000 \text{ nC}/\text{mm}^2$) fluensig, ez is lineáris válaszfüggvényt adott.

A fluensre normált CEM beütésszámok változását mértem az 1. számú mintán a nyalábenergia függvényében. Az eredmények a 37. ábra (a) részén láthatók. Ismert, hogy az ionok által indukált szekunderelektron-emisszió hozama egy adott anyag esetén arányos az elektronikus fékeződéssel (stopping power) a felületen $(dE/dx)_e$ [80]. Pontosan ez látható a nagyobb energiáknál ($>1,6 \text{ MeV}$), azaz kisebb fékeződésnél ($<2,2 \text{ eV}/(10^{15} \text{ atom}/\text{cm}^2)$). Megfigyeltem, hogy az ionok által indukált szekunderelektron-emisszió hozama kisebb protonenergiák esetén eltér a lineáristól. A 37. ábra (a) része mutatja, hogy az elektron-hozam kisebb, mint ami a görbe nagyobb energiához tartozó része alapján várható lenne. Ez az effektus is azt igazolja,

hogy bizonyos fokú töltődés történhet a besugárzás közben, és hogy ez a töltődés a csökkenő energiával (és így az SU-8 anyagban csökkenő behatolási mélységgel) még erősebbé válik.

A 37. ábra (b) része a CEM beütésszámot mutatja a „nagy” és a „kis” RBS detektorból kapott össz-beütésszámhoz viszonyítva az 1. számú minta esetén. Tipikusan ezeket az értékeket használjuk a töltés normalizálás módszerhez a protonnyalábos írásnál. Minden esetben szükséges egy kalibrációt végezni a mikromegmunkálás besugárzás előtt, mert ezek az arányok függhetnek a reziszt vastagságától, és az elektronika beállításaitól (pl. az ADC alsó küszöbének értékétől). Az ábra mutatja, hogy bármelyik RBS detektor helyett a CEM detektort használva sokkal nagyobb beütésszám érhető el. Az is megfigyelhető, hogy az érzékenység csökkenő energiával (növekvő fékezőképességgel) is nő.

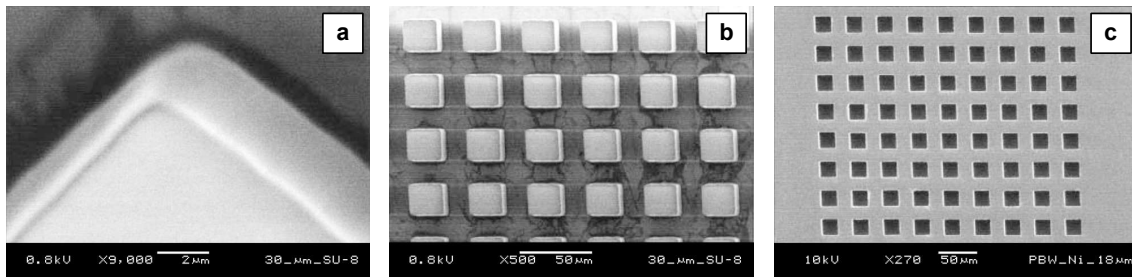
Módszert dolgoztam ki kis töltésmennyiség mérésére. Megmutattam, hogy a szekunderelektron-hozam – adott anyag és sima felület esetén – arányos a protonnyaláb által bevitt töltéssel, így használható a töltés monitorozására. Az SU-8 epoxy alapú rezisztanyagot vizsgálva igazoltam, hogy az egységnyi töltés által kiváltott jelek közül a szekunderelektron hozam a legnagyobb intenzitású – az addigi gyakorlatban bevált RBS-normalizáláshoz képest minimum 30-szoros volt az így elért hozam [C1].

3.3. Nagy felbontású fém mikrobelyegzők

Mivel a PBW prototípusok készítésére alkalmas litográfias módszer, így potenciális ipari alkalmazások akkor válhatnak ésszerűen megvalósíthatóvá, ha fémből tudunk mikrobelyegzőket és öntőformákat készíteni. Fém eszközök létrehozása lehetséges egy polimer rezisztanyagban elkészített mikrostruktúra galvanizálásával. Annak érdekében, hogy nagy oldalarányú fém belyegzőket és öntőformákat készítsünk, szükség van olyan mikrolitográfias technikára, amely közel 90 fokos oldalfalakat képes előállítani és egy olyan módszerre, amivel a primer (általában polimer) mikrostruktúrát át tudjuk másolni a fémmre. Az itt bemutatott adatok bizonyítják, hogy a PBW sikeresen alkalmazható nagy oldalarányú, szubmikronos, sima oldalfalú, fém mikrostruktúrák létrehozására, amelyek oldalfalai közel 90-fokosak.

A galvanizáláshoz három különböző típusú elektrolitoldatot használtunk. A rézgalvanizálás egy hagyományos réz-szulfát-oldatban [81], illetve a Cupracid^R-HT-oldatban történt. A nikkel elektrolitoldat egy módosított Watts-fürdő volt [81].

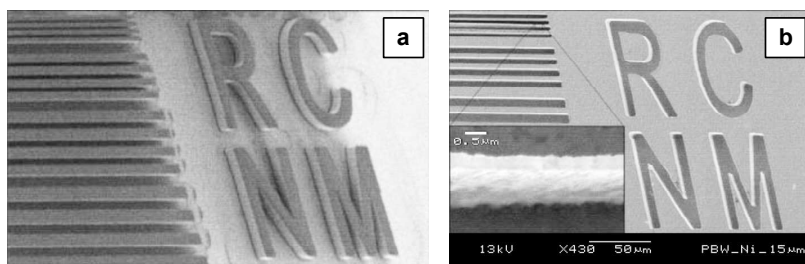
Két különböző szilíciumlapkára felvitt 20 μm vastag SU-8 réteget alkalmaztunk. Az egyik szeletre előzetesen 130 nm rézréteget vittünk fel, míg a másik szeletre először 25 nm titánréteget, majd 200 nm nikkelréteget vittünk fel. Ezekben az esetekben a vékony réz- vagy a nikkelréteg feladata a galvanizálás egyenletes megindítása a felületen mindenhol, ahol nem takarja az előhívott SU-8. Ezt a továbbiakban *seed layer*-nek nevezzük. A Ti réteg a szilíciumhoz való tapadást segíti, erre csak a Ni esetében van szükség [69]. Előhívás után az SU-8 struktúrák közötti területeken a galvanizálást tipikusan 10–18 μm magasságig végeztük. Ezt követően a térhálósodott



38. ábra. (a) és (b) $30\ \mu\text{m}$ vastag SU-8 rezisztrétegben készített oszlopok SEM fényképe. Az oszlopok mérete $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$. (c) Ezen a mintán galvanizálással készítettünk $18\ \mu\text{m}$ vastag Ni réteget, így egy fémrácsot kaptunk.

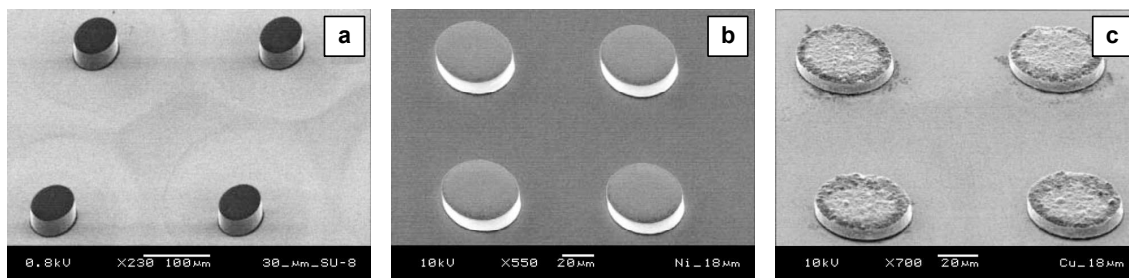
SU-8 polimert lemartuk (nano remover PGTM marószerrel). A tipikus galvanizáló áramok a következők voltak: Cu esetén $25\ \text{mA}/\text{cm}^2$, Ni esetén $50\ \text{mA}/\text{cm}^2$.

Az első példában négyzetes oszlopokat készítettünk, ld. 38. ábra. Nyalábparaméterek: pixelenkénti tartózkodási idő $1\ \text{ms}$, protonenergia $2\ \text{MeV}$, tipikusan $0,5\ \mu\text{m} \times 0,5\ \mu\text{m}$ nyalábméret és $0,4\ \mu\text{m} \times 0,4\ \mu\text{m}$ pixelméret. A 38. ábra (a) része az egyik SU-8 oszlop sarkát mutatja nagy nagyításban, míg a (b) ábra egy áttekintő képet mutat a négyzetesoszlop-mátrixról. Az (a) ábrán látható saroknál a görbületi sugár kb. $0,5\ \mu\text{m}$, ami jól egyezik a nyaláb méretével. Az ábra (c) részén a Ni galvanizált minta látható, amihez az SU-8 polimer maszkot használtuk. Tisztán látható, hogy az SU-8 anyagot teljes egészében sikerült eltávolítani, így az SU-8 négyzetesoszlop-mátrix inverzeként kapott nikkelrács sarkai az SU-8 oszlopok sarkaihoz hasonlóan élesek.



39. ábra. (a) Az RCNM betűk SEM fényképe egy sorozat vékony vonallal, $30\ \mu\text{m}$ vastag SU-8 rezisztrétegben. (b) Ezt a sablont maszkként használva $15\ \mu\text{m}$ vastag Ni réteget galvanizáltunk a hordozóra. A rész-ábra a legvékonyabb vonalat mutatja, ami $300\ \text{nm}$ széles, ez így 50-szeres oldalaránynak felel meg.

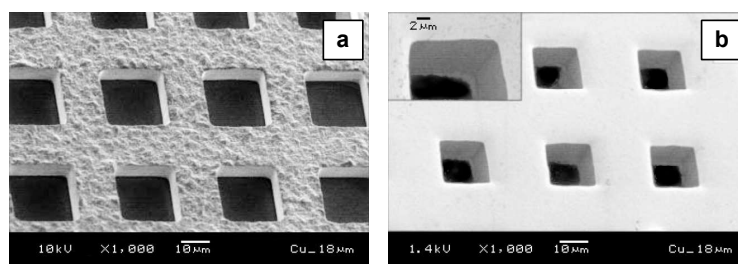
A következő kísérletben (39. ábra) az RCNM (a csoport akkori nevének angol rövidítése) betűket írtuk néhány párhuzamos vonal mellé, a vonalak között csökkenő távolságot választva. Az ábra (b) részén ugyanez a terület látható Ni galvanizálás után, amit $15\ \mu\text{m}$ vastagságig végeztünk. A galvanizálás után a maradék térhálósodott SU-8 rezisztanyagot sikeresen eltávolítottuk. Ahogy az ábra (b) részén látható a legvékonyabb Ni vonal szélessége $300\ \text{nm}$, ami 50-szeres oldalaránynak felel meg.



40. ábra. Polimer és fémmel galvanizált körök pásztázó elektronmikroszkópos fényképei. (a) Körök 30 μm vastag SU-8 reziszt rétegben. (b) 18 μm vastag Ni korongok. (c) 15 μm vastag Cu korongok.

A vonalak hossza 190 μm , a teljes hossz mentén megtartják az állandó szélességüket.

A 40. ábrán három csoport kör látható. Az ábra (a) része mutatja a köröket, amelyeket 30 μm vastag SU-8 rezisztben készítettünk. A (b) ábrán a nikkellel, a (c) ábrán pedig a rézzel galvanizált körök láthatók. Mindhárom csoport körnek simák az oldalfalai. Az SU-8 és a Ni felső felülete is sima, míg a Cu felső felülete durva.



41. ábra. Rézrácsok pásztázó elektronmikroszkópos fényképei. (a) 10 μm vastag Cu réteget galvanizáltunk standard réz-szulfát-fürdőben. (b) 18 μm vastag Cu réteget galvanizáltunk Cupracid^R-HT-fürdőben.

A 41. ábrán két rézrács látható. Az (a) ábra a standard réz-szulfát-fürdőben, a (b) ábra pedig a Cupracid^R-HT-fürdőben galvanizált mintát mutatja. Mindkét esetben simák az oldalfalak. Az (a) ábrán Cu a (b) ábrán pedig Ni/Ti volt a *seed layer*. Az SU-8 eltávolítása közben a galvanizált rézréteg is levált a hordozóról, így egy öntartó rácsot kaptunk.

Mivel a protonnyaláb szubmikrométeres méretűre fókuszálható és a reziszt felületén pásztázható, így nincs szükség levilágító maszk alkalmazására. Tetszőleges alakzatok készíthetők ilyen módon, pl. éles sarkú négyzetes oszlopok, vagy közel tökéletes körök. Nagy oldalarány (kb. 100) érhető el PMMA rezisztben [82]. Sima oldalfalakat készítettünk Ni és Cu galvanizálással, bizonyos esetekben a felső felület is sima volt. Az SU-8 eltávolítása közel 100 %-os volt. A rézgalvanizálási eljárás további optimalizálást igényel, hogy biztosítható legyen a mikrostruktúrák Si hordozóra való jobb tapadása.

Annak ellenére, hogy a PBW eljárás általában lassabb a tömegtermelésre hasz-

nált maszkos mikromegmunkálási eljárásoknál, mégis nagyon hasznos a prototípusok gyors elkészítésére, és a galvanizálás sikeres bevezetésével alkalmassá tehető maszkok és öntőformák készítésére, amelyek már sorozatgyártásra is használhatók lesznek.

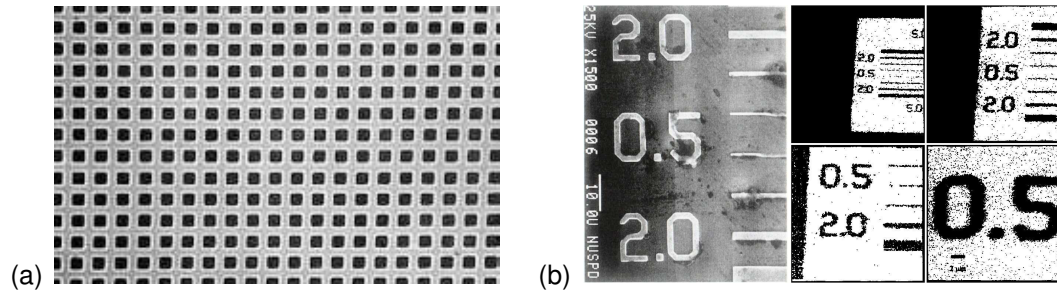
Elsőként készítettem nagyfelbontású fém mikrobélyegzőket PBW módszerrel létrehozott polimer mikrostruktúrákból nikkel- és rézgalvanizálással. Demonstráltam a sorozatgyártás lehetőségét későbbi innovatív alkalmazásokhoz [C2].

3.4. PBW nyalábméret-mérő standardok

A nyalábméret csökkentése több mikroszonda laboratórium célja volt éveken át világszerte, és következésképpen szükség van jó minőségű nyalábméret-mérő standardokra. Ilyen standardoknak alkalmasnak kell lenniük a világszínvonalú nyalábméret mérésére, azaz 400 nm nagyságrendben a nagyáramú alkalmazásokhoz (pl. PIXE, RBS analitikai módszerek), és 100 nm nagyságrendben a kisáramú alkalmazásokhoz (pl. STIM, IBIC analitikai módszerek, egyedi ion roncsolásos tanulmányok, kvantum dot technológiák, és a PBW speciális esetei). A jó minőségű nyalábméret-mérő standardok kritériumai ezért magas színvonalú igényeket támasztanak: a standardnak 3-dimenziósnak kell lennie, sima felületűnek, az oldalél definíciójának jobbnak kell lennie, mint a megméréndő nyalábméret (az aktuális világrekord egy jellemző cél-nyalábméretet jelent), és függőleges oldalfalainak kell lennie. A PBW módszer alkalmas precíz 3D mikrostruktúrák készítésére. A legutóbbi eredmények megmutatták, hogy fém (Ni és Cu) mikrostruktúrák is készíthetők galvanizálással a primer polimer mikrostruktúrákból. A prototípus PBW nyalábméret-mérő standardok – amelyeket a Szingapúri Egyetemen készítettünk – sokkal jobb minőségűek, mint a hagyományos „2000-mesh” aranyrács, amit világszerte jelenleg is sok mikroszonda csoportban használnak. A minőségi különbség a felület simaságot, a függőleges oldalfalakat és a szélek finom éleit jelenti.

Az egyre kisebb nyalábméretetek az ionnyaláb analízisben és mikroszkópiában az új alkalmazási lehetőségeket nyitnak meg: például a biológiai alkalmazásoknál, ahol sejtek mikroszkópiáján belül már sejtalkotókat is leképezhetünk. Egy további, újabb ösztönző erő a kisebb nyalábméretetek elérésére a PBW litográfias módszerrel rezisztanyagokban mikro- és nanostruktúrák készítése [61]. A szubmikronos nyalábméretetek elérése nem könnyű feladat: sok tényező befolyásolja a végeredményt, pl. a zavaró mágneses terek, a nem kívánatos rezgések, a tárgyrések minősége, a lencserendszer tervezése és megépítése, a gyorsítók által szolgáltatott ionnyalábok minősége, mind jelentős szerephez jutnak a végső nyalábméret kialakulásánál [83], [84].

A mikroszonda ionnyalábjának mérete az ionáram nagyságától is függ: általánosan elfogadott, hogy a PIXE és az RBS ionnyaláb-analitikai módszerekhez minimum ~50-100 pA áram szükséges, míg a kisáramú alkalmazásokhoz, pl. STIM és IBIC 1 pA alatti áramok is elegendőek, sőt éppen ilyen kis áramok az ideálisak, szükségesegek. Watt és szerzőtársai egy 1998-as cikkükben [85] megkísérelték elérni a legjobb nyalábméretet, de ezt nehéz volt definiálni, mert nem létezett kielégítő minőségű nyalábméret-mérő standard, és nyalábméret mérésére használható különböző függet-



42. ábra. (a) A „2000-mesh” rézrács SEM fényképe ($12,7 \mu\text{m}$ rácsállandó). (b) Az *e-beam test chip* nyalábméret-mérő standard fényképe, illetve mikro-PIXE Al térképe.

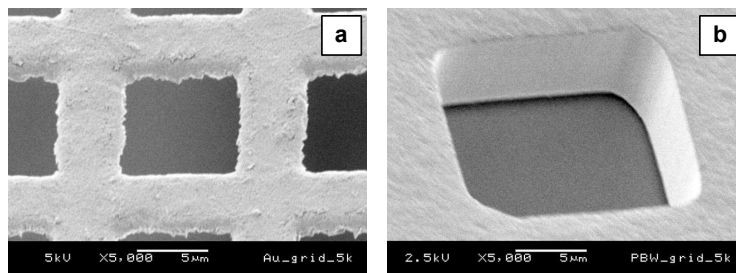
len csoportok által is elfogadott eljárás, továbbá az eredmények reprodukálhatósága is kérdéses volt. Mindezek ellenére akkor az volt a konklúzió, hogy a világrekord nyalábméret 100 pA áram esetén 400 nm körül volt, míg a kisáramú technikákhoz használható esetben $\sim 100 \text{ nm}$.

A leggyakrabban használt standard a ionnyaláb méretének meghatározására a kereskedelmi forgalomban kapható „2000-mesh” (vonal/inch, azaz $12,7 \mu\text{m}$ rácsállandójú) arany- vagy rézrács (ld. 42.(a) ábra). Ez a standard alkalmas a nyalábméret mérésére $1 \mu\text{m}$ nyalábméretig, ennél kisebb nyalábokhoz már nem használható, mert a minta élének minősége nem elég jó, a felület durvaságai a nyaláb méretével összemérhetők, ha a nyaláb mérete lényegesen kisebb, mint $1 \mu\text{m}$.

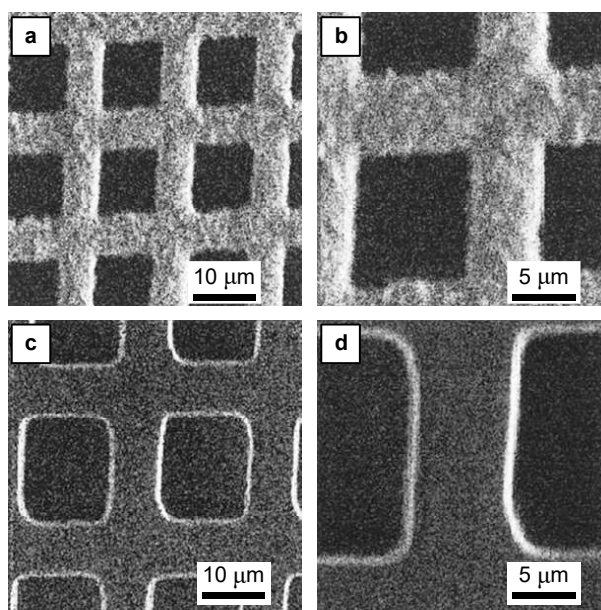
Ennél jobb geometriai paraméterekkel rendelkezett az *e-beam test chip* [86], amit már 1998-ban a szingapúri csoport használt nyalábméret mérésre [85] (ld. 42.(b) ábra). A szilícium chip felületén $0,5 \mu\text{m}$ vastag alumínium réteg található, amiben a kialakított mintázaton a legkisebb vonalszélesség a specifikáció szerint $0,5 \mu\text{m}$. Sajnos azonban ez a standard a specifikációnál rosszabb él-definícióval rendelkezik, ezt elektronmikroszkópos mérésekkel a szingapúri csoport igazolta [86]. Ráadásul mivel az alumínium struktúrák vastag szilícium hordozón vannak, ez a rendszer nem ideális sem PIXE, sem RBS mérésekhez.

Ezek után – az igényeket felismerve – az MFA és az IRMM együttműködésében is kifejlesztettek egy standardot [87], [88]. A specifikáció szerint a fém struktúrák $0,5 \mu\text{m}$ magas falainál a lejtők szélessége 200 nm . Ez a standard is jobb a „2000-mesh” rácsnál, de $\sim 100 \text{ nm}$ méretű nyaláb mérésére már nem alkalmas.

Ebben a cikkben megvizsgáltuk a PBW módszer alkalmazhatóságát, hogy így készíthető-e a korábbiaknál jobb minőségű standard. A PBW módszer alkalmas egyenes falú struktúrák készítésére, mert a protonok az anyagban a pályájuk végétől eltekintve egyenesen haladnak. Csak a pálya végén szélesedik ki a nyaláb mérete a nukleáris fékezés miatt. Ezért szilícium hátlapra SU-8 polimer rezisztanyagból $20 \mu\text{m}$ vastag réteget centrifugáltunk, ami elég vékony ahhoz, hogy a protonok gyakorlatilag elhanyagolható kiszélesedéssel átrepüljenek az SU-8 rétegen. Miután a tervezett 3D struktúra besugárzását és az SU-8 marását befejeztük, ennek a mintázatnak a negatívját elkészítettük fémből galvanizálással [C2]. Ezt követően a térhálósodott SU-8 anyagot kémiai úton lemartuk, így az SU-8 oszlopok negatív képét – a rács struktúráját – kaptuk meg nikkeltől. Az elsőként készített prototípus nikkeltől-



43. ábra. A nyalábméret meghatározáshoz használt standard minták SEM fényképei. (a) „2000-mesh” aranyrács, (b) PBW technikával házilag készített Ni rács. A két fénykép ugyanazzal a nagyítással készült. Összehasonlításukkal látható, hogy a PBW rács sokkal jobb minőségű, ezért szubmikronos nyalábméretok méréséhez ez ajánlott.



44. ábra. (a,b) Protonokkal indukált szekunderelektron (SE) képek a „2000-mesh” rácson, és (c,d) a PBW módszerrel készült standard mintán. A protonnyaláb energiája 2 MeV, árama 50 pA volt.

csak a szilícium hordozón voltak, ezért a standard csak PIXE vagy RBS mérésekhez voltak használhatók. Ezt követően a STIM mérésekre is alkalmas standardot úgy készítettük el, hogy a rácst leválasztottuk a hordozóról. Ezt egy „feláldozható” réteggel (*sacrificial layer*) valósítottuk meg, így öntartó rácst kaptunk (ld. 43.(b) ábra).

Mind a „2000-mesh” rácson, mind pedig a PBW prototípus nikkelrácon végeztünk nyalábméret méréseket 2 MeV energiájú fókuszált protonnyalábbal. A minta felületéről származó szekunderelektronokat (SE) egy Amptektron MD-502 típusú elektron-detektorral gyűjtöttük, amelyet 110° szórási irányban helyeztünk el IBM-geometriában közelítőleg 2,5 cm-re a céltárgytól. A CEM detektor előtt egy 3,6 mm átmérőjű apertúra volt a mérések során, ezen lehetőségünk volt megfelelően megvála-

szott feszültség alkalmazásával optimalizálni a jelek hozamát. A szekunderelektronképek a felületi durvaságot jó kontraszttal jelenítik meg. A „2000-mesh” rácson készült SE képek a 44. ábra (a) és (b) részén, a PBW rács képei pedig a a 44. ábra (c) és (d) részén láthatók. Ahogyan várható volt, ezek az ábrák jól mutatják, hogy a „2000-mesh” minta rosszabb minőségű él definícióval és felületi durvasággal rendelkezik a PBW nikkel rácshoz képest.

Új típusú, javított felületi minőségű tesztmintát – kalibrált rács-állandójú öntartó rézrácstól – készítettem a protonnyaláb méretének meghatározására. Ezzel a mikro- és nanonyalábok mérete is a korábbiaknál lényegesen jobb (~100 nm nagyságrendű) pontossággal meghatározható [C3].

3.5. CR-39 nyomdetektor PBW rezisztként

3.5.1. Újfajta rezisztanyagok: Foturan, CR-39

A PMMA-t már Oxfordban [59], [89] és Szingapúrban [90] is használták különböző kísérletekben. A besugárzási paramétereket van Kan és szerzőtársai publikálták [91].

A Foturan [92] egy fényérzékeny üveg (összetétele: B_2O_3 , CeO_2 , Sb_2O_3 , Ag_2O <1%, K_2O 1–20%, SiO_2 >80%, Al_2O_3 , Na_2O , ZnO , Li_2O 1–10%; sűrűsége $\rho = 2,37$ g/cm³), korábban UV litográfiára [93], és direktírasos lézer megmunkálásra alkalmazták [94]. Az üvegek előnyös tulajdonsága, hogy korrozív és magas hőmérsékletű környezetben is használhatóak, ami a kémiai és biológiai alkalmazások nagy részénél fontos szempont. A hőmérsékleti stabilitása és kémiai ellenállóképessége jelentősen meghaladja a műanyagok ugyanezen paramétereit. A Foturant először Oxfordban tesztelték PBW rezisztként [95].

A CR-39 (más néven poliallil diglikol karbonát, polyallyl diglycol carbonate, PADC, $C_{12}H_{18}O_7$, $\rho = 1,31$ g/cm³), egy hőre keményedő polimer, melyet széleskörűen használnak szilárdtest nyomdetektorként (Solid State Nuclear Track Detector, SSNTD). A CR-39 polimert az elmúlt évtizedekben az Atomkiban sikeresen alkalmazták radon-detektálásra. A CR-39 ígéretes anyagnak tűnt PBW célokra, mivel könnyen elérhető, olcsó és további alkalmazásokhoz is érdekes lehet.

Mindhárom vizsgált anyag pozitív rezisztként viselkedik.

A cikkben leírt munka célja az volt, hogy összehasonlítsam ezt a három anyagot azonos PBW körülmények között, és megvizsgáljam a rendszer képességeit a mikromegmunkálás tekintetében.

A fentiekén túl ennek a munkának a jelentősége, hogy hazai környezetben is meghonosítottam a protonnyalábos írás módszerét, így a hazai PBW további eredményei lehetővé váltak.

A besugárzásokat az Atomki pásztázó ionmikroszondáján végeztem [S1]. A protonenergia 2 MeV, az áram 5–40 pA, a nyaláb mérete 1–2 μ m volt. A pásztázott terület méretét 250 μ m \times 250 μ m és 1 mm² között változtattam. A besugárzáshoz szükséges ion fluensek a következők voltak: PMMA esetén 100 nC/mm² ($6,25 \times 10^{13}$ p/cm²) [60], CR-39 esetén 160–480 nC/mm² ($1-3 \times 10^{14}$ p/cm²), és Fo-

5. táblázat. *Tipikus besugárzási paraméterek.*

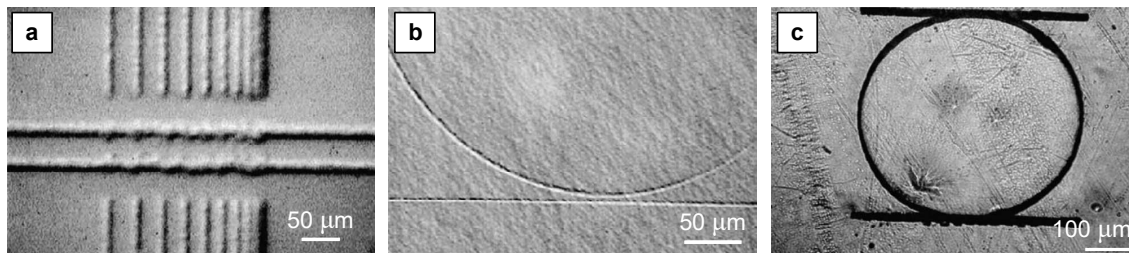
	PMMA			CR-39			Foturan		
Pixel felbontás	1024	1024	1024	1024	1024	1024	1024	1024	1024
Nyalábáram (pA)	10	10	10	10	10	10	5	5	5
Pásztázott terület (mm ²)	1	0,25	0,0625	1	0,25	0,0625	1	0,25	0,0625
Fluens (nC/mm ²)	100	100	100	300	300	300	1	1	1
Idő (s)	10 000	2 500	625	30 000	7 500	1 875	200	50	12,5
Pásztázások száma	10	10	3	10	10	10	3	3	1
Tartózkodási idő (ms)	0,95	0,24	0,20	2,86	0,72	0,18	0,06	0,016	0,012

turan esetén 1 nC/mm^2 ($6,25 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$) [95]. A három különböző anyagban a SRIM [19] szoftverrel kiszámítottam a 2 MeV energiájú protonok behatolási mélységét, ami a következő: PMMA esetén $63 \mu\text{m}$, CR-39 esetén $59 \mu\text{m}$, és Foturan esetén $40 \mu\text{m}$.

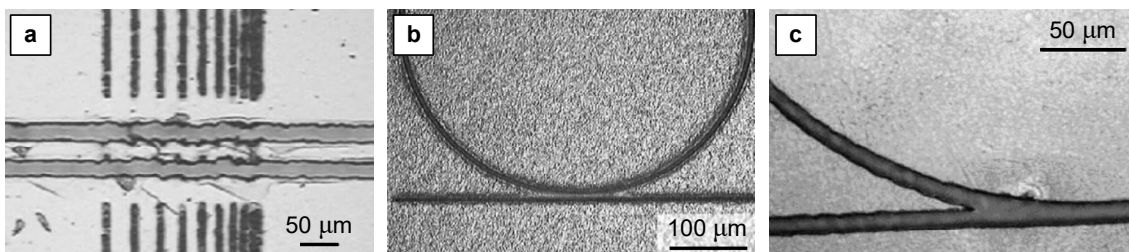
A mintákra felvitt töltés mennyiségét a PIXE-jelekre vezettem vissza. Mivel minden minta csak könnyű elemeket tartalmazott az ultravékony-ablakú (UTW) Si(Li) röntgendetektort használtam [B1]. A röntgenspektrumot a teljes energiatartományra integráltam, mivel ezek minden esetben főleg az oxigén és a szén K vonalait tartalmazták. A spektrumok megfigyelésével arról is meggyőződtem, hogy a mintákra nem került szennyeződés. Először az UTW detektorral felvett spektrumokat töltésre kalibráltam a már kalibrált nyalábszaggatóval (beam chopper) mért töltéshez [24]. Majd a besugárzások közben gyűjtött spektrumok összterületéből kiszámítottam a töltést. A besugárzások közben nem használhattam volna a nyalábszaggatót (ami az ionnyaláb-analitikai mérések során a bevett gyakorlat), mert ez periodikusan szaggatott vonalakat eredményezett volna. Továbbá, a kis áramintenzitások miatt a chopper lapátokról visszaszóródó protonok hozama nem volt elegendően nagy a megfelelő statisztika eléréséhez. A gyűjtött PIXE összeütésszám 1000 és 10 000 között volt, ez 1–3 % statisztikus hibának felel meg, ami jobb mint a chopper eredeti áramkalibrációja. Minden PIXE beütés a mintából érkezett, a zajt az alsó küszöbnél levágtam (lower level discriminator). Ellenőrzésképpen minta nélkül is gyűjtöttem PIXE spektrumokat, amelyek a vártak megfelelően üresek voltak.

A nyaláb pásztázását National Instruments (NI) PCI-6711 típusú mérésvezérlő-adatgyűjtő kártyával, és az IonScan 2.0 C++ szoftverrel végeztem [96]. Minden mintán többször végigpásztáztam a nyalábot, így az esetleges áramintenzitás inhomogenitásokat kiátlagoltam. Egy házi fejlesztésű elektrosztatikus nyalábszaggatót (blanking) használtam a nemkívánatos expozíció elkerülésére. Az IonScan szoftver által kiadott blanking jelet az NI kártya kimenetéről a nyalábszaggató tápegységére vezettem, ami a nyaláb eltérítő lemezpár egyik lemezére feszültséget ad vagy azt leföldeli. (A másik lemez folyamatosan le van földelve.) A felfutó és a lecsengési idő is $1 \mu\text{s}$ nagyságrendű, ami elhanyagolható a pixelenkénti tartózkodási időhöz viszonyítva (ld. 5. táblázat). A tartózkodási idő $100 \mu\text{s}$ és 1 ms között volt, amit az IonScan szoftverrel lehet beállítani.

A pásztázott struktúrák általában a teljes terület kb. 3 %-át töltötték ki, egy-egy besugárzás kb. 5 percig tartott. A kisebb pásztázási méreteknél a teljes begyűjtött töltést csökkentettem, így biztosítva az azonos fluens elérését. A pixelenkénti tar-



45. ábra. Optikai mikroszkópos fényképek előhívás előtt. (a) CR-39, (b) PMMA, (c) Foturan.



46. ábra. Optikai mikroszkópos fényképek előhívás után. (a) CR-39, (b) PMMA, (c) Foturan.

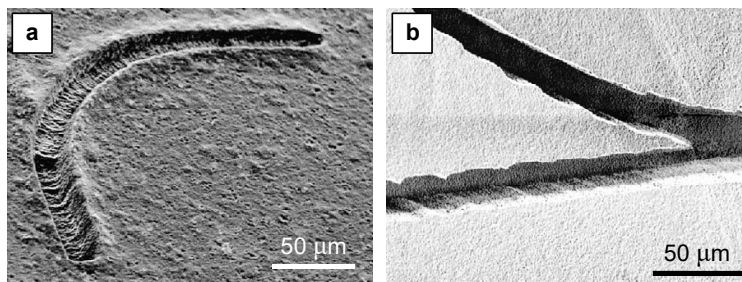
tózkodási időt nem akartam csökkenteni, mert egyrészt ezzel megnöveltem volna a pásztázó mágnesek által okozott hiszterézist, másrészt a blanking ki- és bekapcsolási idő összemérhetővé vált volna a pixelenkénti tartózkodási idővel. Ezért az áram csökkentésével is próbáltam elérni a megfelelő fluenst, azonban a túl kis áram instabillá vált. Végül a pásztázások számát csökkentettem (három pásztázás még elegendő volt az áram fluktuációk kiátlagolásához). A Foturan esetén még így is le kellett csökkentenem a pixelenkénti tartózkodási időt $10 \mu\text{s}$ -ra, és a pásztázások számát is csökkentettem.

A besugárzások után differenciális interferencia kontraszt (Differential Interference Contrast, DIC) technikával tanulmányoztam a minták felületét. A DIC kontraszt érzékeny a törésmutató változásokra, így láthatóvá teszi a besugárzások nyomait már a marás előtt. Az 45. ábrán néhány struktúra látható besugárzás után, de marás előtt. Az 46. ábrán ugyanezek a struktúrák láthatók a marás után.

A besugárzott PMMA mintákat az irodalomból ismert módon hívtuk elő [60]. A Foturan előhívását (hőkezelését) az UV litográfiában bevált módon végeztük [93], majd a standard marási eljárást alkalmaztuk. A CR-39 marását az Atomkiban meglévő több mint 20 éves tapasztalat alapján végeztük [97].

A marások elvégzése után a mintákról SEM fényképeket készítettünk. A minták töltődésének elkerülése érdekében a SEM előtt a mintákat vékony aranyréteggel párologtattuk be.

Az 45.(a) ábrán a CR-39 mintára besugárzott struktúra látható. A mintázatot úgy terveztem meg, hogy megfigyelhető legyen hány vonal válik el a besugárzás után, és hogy a különálló vonalak nem mosódnak-e össze a marás után. Arra a



47. ábra. Elektronmikroszkópos fényképek előhívás után. (a) PMMA, (b) Foturan.

következtetésre jutottunk, hogy a marás nem tette tönkre a struktúrákat, azon a marás előtt és után is ugyanolyan jó minőségűek voltak mind a CR-39 mind pedig a PMMA esetében. Tehát az elérhető felbontást az ionnyaláb mérete határozza meg.

Az 45.(b) ábrán egy tipikus ring rezonátor struktúra részlete látható. Az egyenes szakasz és a körvonal közötti távolság mérete kritikus az ilyen alkalmazások szempontjából. A méreteket ld. a 46.(b) ábrához tartozó magyarázatnál.

Az 45.(c) ábrán ugyanez a struktúra látható Foturan üvegben. A PMMA és CR-39 besugárzásokkal ellentétben struktúrák nem voltak láthatók a besugárzás után azonnal a Foturanban, csak miután a hőkezelést elvégeztük. Ekkor még kémiai marást nem végeztünk, a DIC kontrasztban megjelenő törésmutató változást a besugárzott helyeken kialakuló kristályosodás okozta. A kristályos anyag a besugárzatlan amorf anyagnál gyorsabban maródik fluorsavban (HF).

Az 46. ábrán a marás utáni fényképek láthatók. A nyalábméret tekintetében nem látható különbség a marás előtti és utáni képek között. Viszont a különböző anyagok között van különbség, ahogyan az a ring rezonátor struktúra esetén látható a PMMA és a Foturan esetében. A PMMA-ban az egyenes és a kör a marás előtt és után sem érnek össze (ld. 45.(b) és 46.(b)). Viszont a Foturanban mindkét esetben átfednek (ld. 45.(c) és 46.(c)). Mindkét ring rezonátor azonos méretű, de a besugárzott mintázatok különbözőek. A vonal és a kör közötti rés 4 pixel a Foturanban, és 10 pixel a PMMA-ban. Az egyenes és a körvonal szélessége mindkét esetben 4 pixel. Kisebb nyalábmérettel besugározva valószínűleg mindkét anyagban különváltak volna a struktúrák.

A 45.(a) és 46.(a) ábrákon látható struktúrák az OMDAQ szoftverrel lettek besugározva [98]. Az OMDAQ szoftvernek az akkori verziója még nem biztosított elegendően nagy pásztázási felbontást (max. 256×256 pixel), és a pásztázást csak egymás melletti vonalakból tudta összerakni. A gyors pásztázás iránya a függőleges volt, ezért a vízszintes vonalakon látható egyenetlenségek oka a hiszterézis. Az ilyen pásztázási hibák elkerülése érdekében teszteltem a fentebb említett NI kártyán és a IonScan 2.0 szoftveren alapuló pásztázást, amivel a pixelek bejárési sorrendje tetszőlegesen definiálható, és lényegesen nagyobb felbontást is biztosít (max. 4096×4096 pixel; de a nyaláb mérete és a pásztázott terület mérete miatt elegendő volt 1024×1024 pixel).

Néhány tipikus SEM fénykép látható a 47. ábrán. (Megjegyzés: a 47.(a) ábrán látható durva felület elkerülhető más típusú PMMA használatával.)

A struktúrák minősége elmarad a szingapúriakétól. Ez részben a gyengébb nyalábméretnek, részben a kevésbé stabil nyalábintenzitásnak az eredménye. A hazai mikrostruktúrák javuló minőségét a kvadрупól lencsrendszer dublettről triplettre történő fejlesztés tette lehetővé (2004-ben GVOP forrásból), ezt követően lényeges fejlődést jelentett az új Tandetron gyorsító és a nanoszonda belépése. A mikroszonda Tandetronhoz költözése szintén nyalábméret és intanzitás stabilitás javulást okoz.

Az általánosan elterjedt poli(metil-metakrilát) (PMMA) polimer, valamint a fényérzékeny Foturan üveg mellett a hazai gyakorlatban radon-detektálásra használt CR-39 néven ismert poliallil-diglikol-karbonát (PADC) anyagot használtam elsőként a hazai PBW során. Megvizsgáltam a protonok által a Foturan és CR-39 anyagba bevitt roncsolás mértékét és a roncsolt tartomány marási tulajdonságait [C4].

3.5.2. Optimális fluens meghatározása a CR-39 esetén

A következő munkában a CR-39 anyagot sugároztuk be 2 MeV energiájú protonokkal és alfa-részecskékkel annak érdekében, hogy optimalizáljuk a protonnyalábos íráshoz szükséges fluenst. A besugárzások az Atomkiban és a Szingapúri Egyetemen történtek. A besugárzások után a minták előhívása és kiértékelése Debrecenben történt. A besugárzott fluenst akkor tekintettük elegendően nagyknak, ha a látens nyomok olyan mértékben átfedték egymást, hogy a besugárzott terület rövid marási idő (<1 perc alatt) alatt teljes egészében kiesett. Monte-Carlo-szimulációkon alapuló elméleti számításokat végeztünk azzal a céllal, hogy kiszámítsuk a látens nyomok többszörös átfedését. Az optimális fluenst úgy definiáltuk, hogy legyen az a minimális fluens és marási idő, amelynél már megfigyelhető, hogy a teljes besugárzott terület kiesik. A rövid marási idő azért szükséges, mert csak így kaphatunk jó feloldású mikrostruktúrákat, míg a kis részecskefluens gazdaságossági célból előnyös (rövidebb besugárzási idő), valamint a túlságosan nagy fluens alkalmazása megnöveli a nemkívánatos károsodás esélyét (pl. megolvadhat a minta).

Más maratottnyom detektorokhoz viszonyítva a CR-39-nek van a legnagyobb érzékenysége a kis lineáris energia transzfer (LET) részecskékre, mint amilyenek a protonok és a nagyenergiás kozmikus eredetű részecskék. A CR-39 LET küszöbértéke egyedi részecskékre 8×10^{-10} J/m, merőleges beesés esetén [99]. Mivel a CR-39 maratottnyom detektornak ilyen nagy az érzékenysége, érdemes részletesen megvizsgálni, hogy alkalmas lehet-e rezisztanyagként protonnyalábos mikromegmunkáláshoz, ahogyan ezt a lehetőséget az előző cikkben már megmutattuk [C4]. További előnye, hogy kiváló minőségben beszerezhető különböző gyártóktól.

A kísérletekhez Tastrak típusú PADC (CR-39) maratottnyom detektoranyagot használtunk, amelyet a Track Analysis System Limited (Bristol, UK) cég gyárt. A PADC mintákat $12 \text{ mm} \times 16 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ méretűre vágtuk le, a gyártótól beszerzett $275 \text{ mm} \times 300 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ méretű táblákból.

A mintákat protonokkal és alfa-részecskékkel sugároztuk be az Atomki pásztázó ionmikroszondájánál [S1]. Az ionok energiája 2 MeV volt, az áramot 5–60 pA között változtattuk. A nyalábot 1–2 μm méretűre fókuszáltuk. A minták felületé-

re felvitt töltés mennyiségét a visszaszórt ionok hozamával kalibráltuk, amelyhez a nagy térszögű p-i-n dióda detektorrendszert használtuk [100]. Ez az előző munkában használt UTW Si(Li) detektornál még nagyobb hozamot biztosított, mert 4 darab 1 cm^2 felületű detektorból állt, és ezeket a mintához olyan közelre sikerült elhelyezni, hogy így a 400 mm^2 összfelület által lefedett térszög $1,87\text{ sr}$, ami 7,5-szer nagyobb, mint a szingapúri „nagy” RBS detektor térszöge. Ráadásul a p-i-n diódák használata sokkal egyszerűbb, mint az UTW Si(Li) detektoré.

A besugárzások egy részét a Szingapúri Egyetem CIBA laboratóriumában végeztük abból a célból, hogy az Atomkiban végzett PBW minőségét össze tudjuk hasonlítani a világszínvonalú laborban elérhető minőséggel [A1]. Ott csak protonokkal végeztük a besugárzásokat, az itthonival azonos energiát alkalmazva. A nyaláb mérete kb. $0,5\text{ }\mu\text{m}$ volt. A fluens mérését szintén a visszaszórt protonok hozamából származtattuk, ehhez egy 300 mm^2 aktív területű gyűrű alakú Si felületi záróréteges detektort használtunk.

A besugárzott alakzatok egyszerű négyzet alakú kitöltött struktúrák voltak $100\text{ }\mu\text{m} \times 100\text{ }\mu\text{m}$, illetve $200\text{ }\mu\text{m} \times 200\text{ }\mu\text{m}$ méretben.

A besugárzások után a mintákat $6,25\text{ N NaOH}$ oldatban marattuk 70°C hőmérsékleten. A marást 5 másodpercenként megszakítottuk, így lehetőségünk volt optikai mikroszkópos megfigyeléssel ellenőrizni az előhívás előrehaladását.

Annak érdekében, hogy rövid marási idő alatt a teljes besugárzott terület kiessen, feltételeztük, hogy a minták olyan nagy ion fluenst kaptak, hogy a látens nyomok sokszorosán átfedjenek egymással. A teljes kimarás akkor válik lehetővé, ha az átfedések olyan nagymértékűek, hogy a roncsolatlan területek már nem alkotnak egybefüggő geometriai hálózatot.

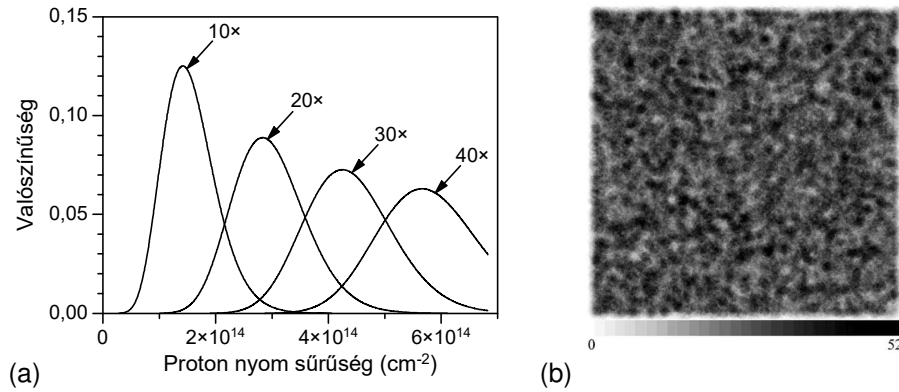
Tegyük fel, hogy egy A területű négyzetben a protonok látens nyomai véletlen eloszlásban helyezkednek el. Az egyedi látens nyomok kör alakú területet roncsolnak, amelynek mérete S . Annak valószínűsége, hogy az A terület bármely adott pontján a látens nyomok k -szorosán átfednek:

$$P_k = \frac{N(N-1)(N-2)\dots(N-k+1)}{k!} \left(\frac{S}{A}\right)^k \times \left(1 - \frac{S}{A}\right)^{N-k},$$

ahol N a látens nyomok száma, amelyek az A területen véletlenszerű eloszlásban helyezkednek el. A 48.(a) ábra a látens nyomok átfedésének valószínűségét mutatja az ion fluens függvényében.

Ezen megfontolások alapján egy Monte-Carlo-szimulációt is készítettünk, amivel modelleztük a látens nyomok átfedését. A szimulációban a következő bemeneti paramétereket használtuk: az egyedi látens nyomok átmérője (protonok esetén 3 nm , alfa-részecskék esetén 10 nm); a nyaláb mérete (10 nm és $10\text{ }\mu\text{m}$ között változtattuk); függőleges és vízszintes nyalábprofil (Gauss- vagy trapéz-eloszlás). Egy tipikus szimuláció eredményét a 48.(b) ábra mutatja $100\text{ nm} \times 100\text{ nm}$ nyalábméret és 3 nm átmérőjű protonnyom esetén. A szimulációban felhasznált ionok száma $3,75 \times 10^4$ volt ezen a területen (a nyomsűrűség $3,75 \times 10^{18}\text{ cm}^{-2}$).

Méréseink alapján az optimális marási idő 60 s . Ennyi idő alatt a legnagyobb fluenssel besugárzott terület teljes mértékben kimaródott (azaz kiesett), míg a legkisebb fluenssel besugárzott területeken egyáltalán nem maródott ki az anyag.



48. ábra. (a) A látens nyomok átfedésének valószínűsége a nyomsűrűség függvényében. (b) A Monte-Carlo-szimuláció tipikus eredménye. A szürke skálán a fehér jelenti a minimális, a fekete pedig a maximális intenzitást. A négyzet 100 nm × 100 nm nyalábméretnek felel meg, és egy egyedi proton nyomának átmérője 3 nm. A protonok összes száma $3,75 \times 10^4$ ezen a területen (a nyomsűrűség $3,75 \times 10^{18}$ cm⁻²).

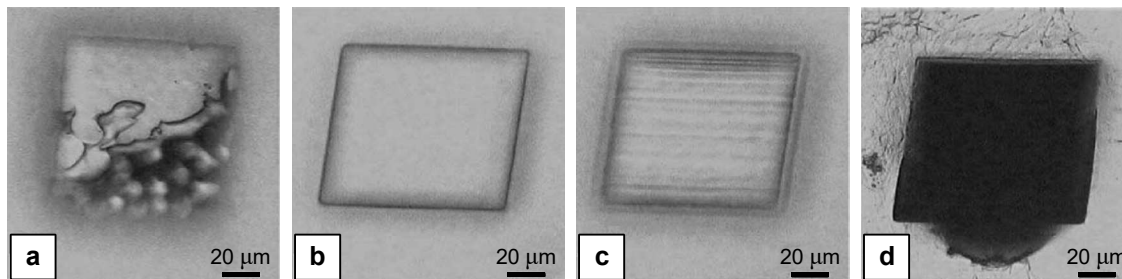
A besugárzatlan polimerben a marási sebesség 0,40 nm/s. Így a 60 s marási idő alatt 24 nm fog kimaródni a besugárzatlan területen: ennyivel lentebb maródik a felület és ennyi lesz az élek körül kialakuló görbületi sugár is. Ez tekinthető a feloldás alsó határértékének is. Ez a bőven a cikk írásának idején elérhető legkisebb nyalábméret alatt volt [A1], és ilyen feltételek mellett a marási idő jól kontrollálható. Ha a jelenleg elérhető világrekord ~ 10 nm nyalábméret alá akarunk menni a marás miatt kialakuló görbületi sugárral, akkor a marószerszám hőmérsékletének csökkentésével ez megvalósítható.

A kimarotott struktúrák optikai mikroszkópos vizsgálatával az alkalmazott ionfluens tartományban megtaláltuk az optimális fluens az adott marási feltételekhez.

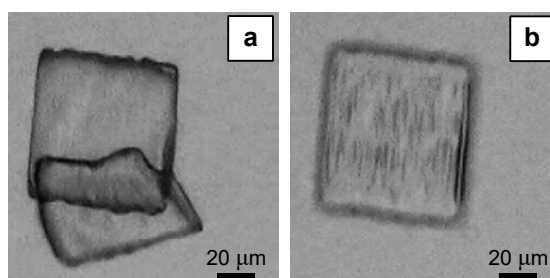
Ezzel a módszerrel mind a szingapúri mind a debreceni minták esetén 600 nC/mm² adódott, mint a 2 MeV protonok esetén legjobb fluens. A besugárzott terület kiesett és sima volt a kimart gödrök alja (az ionok pályájának végén, ld. 49.(b) ábra). Kisebb fluenseknél a marás nem volt teljes (49.(a) ábra), nagyobb fluenseknél viszont a gödrök alja egyenetlen felületű lett (49.(c) ábra). A legnagyobb fluenseknél megfigyeltük a minta megolvadását is. Bizonyos esetekben nemcsak a besugárzott terület, hanem csepp alakú anyag kifolyást is megfigyeltünk a besugárzott terület alsó részénél, majd a marás ezt a megolvadt részt is eltávolította (49.(d) ábra).

Az alfa-részecskékkal történt besugárzások során a fluens 190–2600 nC/mm² tartományban volt, a marást csak 5 s ideig végeztük. Minden besugárzott terület kiesett, még a legkisebb fluens kapott területek is. Egy esetben még éppen meg tudtuk figyelni a távozó anyagot (50.(a) ábra), ami azt jelenti, hogy az ehhez a fluenshez tartozó marási idő éppen az ideális érték közelében volt, a következő 5 s marás múlva már ez a fedél is eltávozott (50.(b) ábra).

A méréseink alapján levonhatjuk a következtetést, hogy a CR-39 anyag sokkal



49. ábra. Protonokkal besugárzott minták. (a) alulexponált minta, részben kimaratva, (b) korrekt expozíció, teljesen kimaratva, síma a struktúra alja, (c) túlexponált minta, egyenetlen alja, (d) túlexponált minta, megolvadt felület és csepp.



50. ábra. Alfa-részecskékkel besugárzott minták. (a) 5 s marás után (látható a kieső darab, ami már részben feljebb emelkedett a minta felületéről, ezért nincs teljesen fókuszban), (b) 10 s marás után (a kiesett darab már nem látszik, csak a kimart gödör látható).

érzékenyebb az alfa-részecskékre, mint a protonbesugárzásra (ahogyan ez várható volt). Ezért kisebb fluens kell alkalmazni alfa-részecskék esetén. Így tehát egy újabb sorozat besugárzást végeztünk 10–300 nC/mm² közötti fluens tartományban. Az optimális fluens alfa-részecskék esetén 60 nC/mm².

Ha egy adott alkalmazás szempontjából szükség van vékony rétegben kimart struktúrákra, akkor a CR-39 alfa-besugárzása szép megoldást kínál: nincs szükség nagy fluensre, és jobban ellenáll a nemkívánt roncsolásnak.

A lineáris energia transzfer (LET) értéke 2 MeV proton esetén CR-39 anyagban $3,27 \times 10^{-9}$ J/m, 2 MeV alfa esetén pedig $3,23 \times 10^{-8}$ J/m [19].

Az elnyelt dózis (D , mértékegysége J/kg) a következő formulával számítható:

$$D = \frac{\Phi \cdot \text{LET}}{\rho},$$

ahol Φ az ion fluens (m⁻²); és ρ az anyag sűrűsége (kg/m³). Méréseink alapján az optimális protonfluens $3,75 \times 10^{18}$ m⁻² (600 nC/mm²); ami $9,36 \times 10^6$ J/kg elnyelt dózist felel meg a felületen. Hasonló elnyelt dózist értünk el $3,75 \times 10^{17}$ m⁻² (60 nC/mm²) 2 MeV energiájú alfa-részecskékkel.

Mivel az alfa-részecskék és protonok esetén a látens nyomok keresztmetszetének területe is kb. 10-szeres faktorban különbözik egymástól, így az alfa-részecskék esetén

alkalmazott fluens a protonokhoz hasonló átfedést eredményez (a fenti analitikus formula és a Monte-Carlo-szimulációink alapján is).

Összehasonlításképpen, 2 MeV energiájú protonok esetén PMMA-ban a ideális fluens 75–85 nC/mm⁻² [60], és 10–40 nC/mm⁻² SU-8 rezisztben [101].

Meghatároztam a CR-39 protonokra vonatkozó dózisérzékenységet: a mikromegmunkáláshoz szükséges optimális protonfluens $3,75 \times 10^{18} \text{ m}^{-2}$ (600 nC/mm⁻²); ami $9,36 \times 10^6 \text{ J/kg}$ elnyelt dózist felel meg a felületen. Hasonló elnyelt dózist érhető el tizedennyi 2 MeV energiájú alfa-részecskékkel [C5].

3.5.3. A CR-39 érzékenységeinek növelése CO₂ kezeléssel

Az előző munkában [C5] megmutattuk, hogy a CR-39 nyomdetektor anyag rezisztként használható a PBW eljáráshoz. A legtöbb esetben környezeti radondetektorként használják alfa-részecskék detektálására normál légnyomáson. Ha viszont PBW rezisztanyagként akarjuk használni, akkor protonokkal vagy alfa-részecskékkel vákuumban végezzük a besugárzásokat. Egy ilyen besugárzás során a vákuumkamrába helyezéskor a besugárzás megkezdése előtt tipikusan néhány óras időtartam a nagyvákuumban töltött idő, míg a besugárzás végén is legalább néhány perc szükséges mire kivehető a vákuumból a polimer nyomdetektorok (minták). Ez a vákuumban töltött idő csökkentheti az anyag sugárzás érzékenységét, azaz a kémiai előhívás és a besugárzott fluens kapcsolatára hatással van [102]. Mivel ez a jelenség számottevő hatással lehet a CR-39 anyag PBW során rezisztként való felhasználására, ezért ebben a munkában megvizsgáltuk a vákuumozás hatását.

Másrészt, korábbi tapasztalatok szerint a nyomdetektor anyagában a protonok és az alfa-részecskék nyomait nagyobb érzékenységgel lehet kimaradni CO₂ kezelés után [103]. Ezért ezen munka második részében a mintákat besugárzások utáni CO₂ kezelésnek vetettük alá, és a PBW szempontjából vizsgáltuk a tulajdonságokat.

A besugárzásokat az Atomki pásztázó ionmikroszondájánál végeztük [S1], a besugárzások paraméterei az előző sorozattal azonosak voltak.

A vákuum effektusok tesztelése céljából több azonos mintát készítettünk. Az előző munkánkban meghatározott optimális fluens értékkel végeztük a besugárzásokat (600 nC/mm²) és a maratásokat (6,25N NaOH oldatban, 70°C hőmérsékleten, 60 s ideig) [C5]. A vákuum effektusok hatását a roncsolt területek optikai mikroszkópos vizsgálatával tanulmányoztuk.

A besugárzások utáni vákuumban töltött idő hosszának hatását tanulmányoztuk két sorozat mintán. Az egyik sorozat mintát 12 óráig vákuumban tartottuk a besugárzás után. A másik sorozat mintát az utolsó besugárzás vége után 2 perccel kivettük a vákuumból, az egyes besugárzások pedig 1–5 percig tartottak, ami a minta sorozat esetén változó, de rövid utó-vákuumozási időket eredményezett.

Azt is tanulmányoztuk, hogy a besugárzás előtt vákuumban töltött idő van-e hatással az előhívott struktúrákra. Ehhez egy sorozat mintát helyeztünk vákuumba, és a besugárzásokat 30 percenként végeztünk el. Ezek a besugárzások szintén maximum 5 percesek voltak. Az összes besugárzás végén még 10 percet vártunk, majd

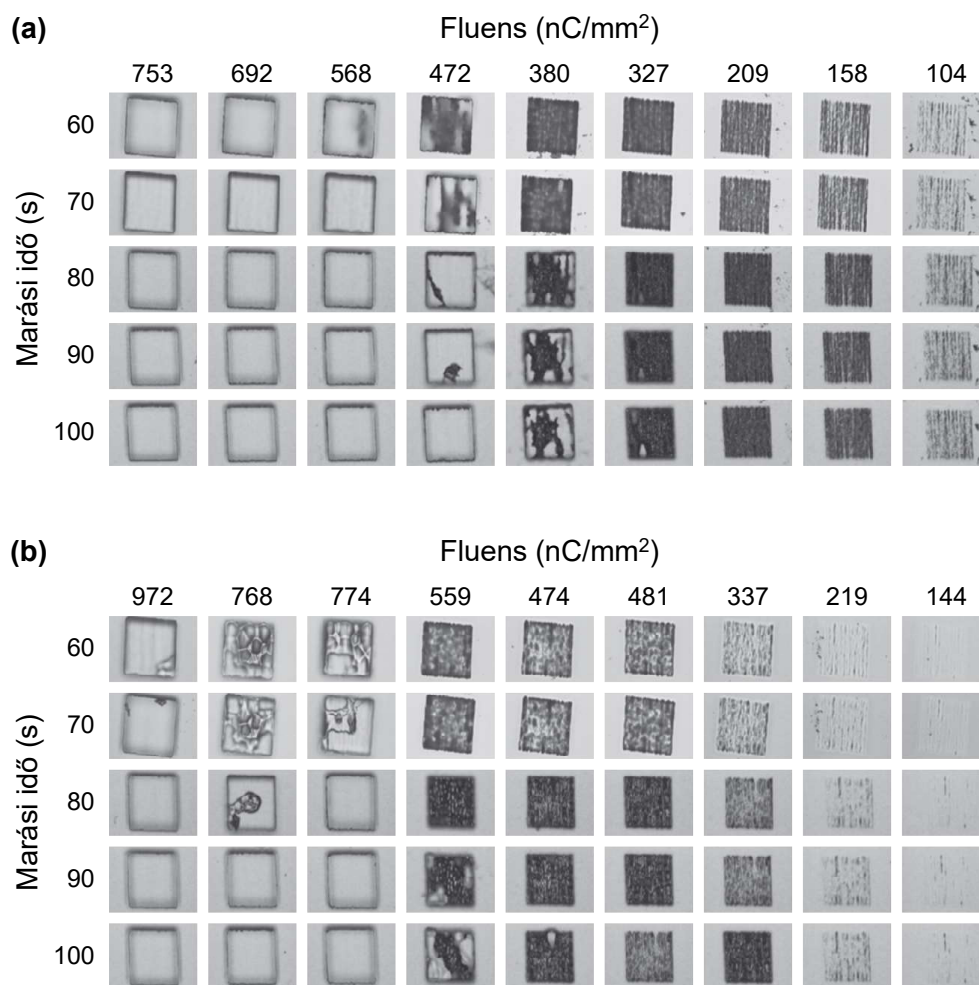
fellevegőztük a vákuumrendszert.

Ezt követően a CO₂ kezelés hatását vizsgáltuk. Két sorozat mintát készítettünk, azonos besugárzási körülmények között. Az egyik sorozat mintát a besugárzás után és a marás előtt CO₂ kezelésnek vetettük alá, a másik pedig a kezeletlen (kontroll) mintasorozat volt. Az eddigi tapasztalatok alapján a besugárzási fluens 100 és 1000 nC/mm² között változtattuk, a marási időt pedig 60 és 100 s között. A minták CO₂ kezelését egy közönséges szódásszifonban végeztük szobahőmérsékleten. A szifon 2 literes térfogata száraz volt, levegővel feltöltött állapotában belehelyeztük a kezelendő mintákat. Ezt követően légmentesen lezártuk, és beleengedtük a szén-dioxid gázt. A betöltött gáz mennyiségét is megbecsültük: a patronok tömegét mérve a betöltés előtt és után. Az edényt ily módon túlnyomás alá helyeztük. A levegő parciális nyomása mindig 1 bar volt a palackban, míg a szén-dioxid nyomása kb. 5 bar. A kezelési idő 1 hétig tartott. A kezelés végén a szén-dioxidot kiengedtük a palackból. Ez után a palackot kinyitottuk, és kivettük a mintákat. A kezelés után, a marás megkezdése előtt 5 percig normális légköri nyomáson tároltuk a mintákat. Ezt az eljárást a korábban kikísérletezett paraméterekkel vittük végig [103]. Minden marási lépés után megvizsgáltuk a mintákat optikai mikroszkóppal.

A vákuumozási kísérletben arra számítottunk, hogy a besugárzás előtt vagy után vákuumban töltött idő befolyásolni (rontani) fogja a nyomdetektorok érzékenységét. Ennek ellenére ezt nem tapasztaltuk. A minták kigázosodtak, azaz volt elegendő idő arra, hogy a bennük lévő esetleges gázok a vákuumozás ideje alatt eltávozzanak. A nyaláb által roncsolt anyag kimaródását nem befolyásolta a vákuumban töltött idő hossza, ezt a kontroll minták azonos körülmények közti besugárzása és marása igazolta. Az így megfigyelt „vákuum effektus hiányát” meg tudjuk magyarázni a nagy fluens alkalmazásával. Korábbi tapasztalatok alapján ismert volt, hogy a vákuum hatása csak a kis lineáris energia transzfer (LET) részecskék (azaz protonok, és nagy energiájú alfa-részecskék) esetén jelentős [102]. Esetünkben viszont a protonok látenis nyomainak átfedése mintegy 30–40-szeres [C5], ami azt jelenti, hogy a roncsolás is kb. 30-szor nagyobb mint egy egyedi protonnyom térfogatában. Ezért ilyen nagy fluensek esetén a vákuum hatása nem jelentős.

A „szén-dioxid kísérlet” eredménye nagyon kedvező a roncsolt anyag teljes kimarása tekintetében. Az 51. ábra (a) részén a CO₂ kezelt a (b) részén pedig a kontroll minták optikai mikroszkópos fényképei láthatók marás után. A kis fényképek mátrix rendszerében a sorok a különböző marási időket jelentik, az oszlopok pedig a különböző besugárzási fluenseket. Látható, hogy a marási idő növelésével minden esetben teljes kimaródás érhető el, de kisebb fluensek több időt igényelnek.

Ahogy az az előző munkánkban megállapítottuk, az optimális fluens 600 nC/mm² ($3,75 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$) volt 2 MeV energiájú protonok esetében, és az optimális marási idő 60 s [C5]. Ennél a marási időnél az egyedi ion nyomok átmérője nem túl nagy, tehát ez a módszer alkalmas protonnyalábos írásra nanométeres tartományban is. Ezt a marási időt rögzítve, azt a következtetést vonhatjuk le, hogy az optimális fluens a CO₂ kezelt minták esetében kisebb lett: 400 nC/mm² ($2,5 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$). A kezeletlen (kontroll) minták esetében pedig ismét kimutattuk, hogy a korábbi eredményünk helyes volt, azaz CO₂ kezelés nélkül az optimális fluens 600 nC/mm² ($3,75 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$).



51. ábra. (a) Besugárzott területek a CO₂ kezelt mintákon előhívás után. (b) Besugárzott területek a kezeletlen (kontroll) mintákon előhívás után. A fényképek mátrix elrendezése a következő rendszert követi: a sorok a különböző marási időket, az oszlopok a különböző fluenseket jelentik.

Megmutattam, hogy a CR-39 érzékenysége 30%-kal növelhető a besugárzás utáni CO₂ kezeléssel [C6].

4. PBW – alkalmazások

Kivonat

A PBW direkt írásos litográfias módszert többféle területen alkalmaztuk. A fejezet első részében néhány mikrooptikai alkalmazást mutatok be.

Passzív hullámvezetőket készítettünk PMMA-ban a Szingapúri Egyetem nanonyalábjával [D1]. A törésmutató mélységi profiljának meghatározása már hazai eredmény [D2]. A PMMA után egy másik polimer, a PDMS esetén is meghatároztuk a protonbesugárzás által okozott törésmutató-változást a mélység függvényében [D3].

A törésmutató-változáson túl egy másik jelenség, a tömörödés is lehetőséget nyújt mikrooptikai eszközök készítésére. Ennek mértéke a PDMS-ben sokkal nagyobb, látványosabb, mint PMMA-ban vagy különböző üvegekben. Ezért a PDMS tömörödését kvantitatív módon is vizsgáltuk. Ezen az elven optikai eszközöket (pl. diffrakciós rácsokat, konvex mikrolencséket) hoztunk létre protonokkal [D4], [D5], és nehezebb ionokkal [D6].

Mikrofluidikai eszközök és mikroanalitikai módszerek kutatása és fejlesztése napjainkban népszerű tudományterület. Egyre több mikrofluidikai eszköz talál alkalmazásra, ezért óriási az igény az új eszközök fejlesztésére. A mikrotechnológiák elterjedése és fejlődése lehetővé teszi az egyre fejlettebb és nagyobb mértékben integrált lab-on-a-chip eszközök, mikrolaborok megvalósítását.

Az MFA-val együttműködve szilíciumból készítettünk egy mikroturbinát [D7]. Ily módon a világon elsőként hoztunk létre mozgó alkatrészt tartalmazó szilícium-mikroeszközt, amit a szingapúri csoport is elismert azzal, hogy szerepelteti az ipari potenciális felhasználók figyelmébe ajánlott pbeam.com weblapon.

A Pannon Egyetem Lendület kutatócsoportjával és az MFA-val egy általam vezetett OTKA projekt keretében együttműködve, készítettünk egy új mikrofluidikai eszközt, amellyel a végső célunk a cirkuláló ráksejtek kiszűrése vérből. A munka első részéből készült cikkben a rendszer tervezését és megépítését írtuk le, valamint a megvalósíthatóságot elemeztük [D8]. A cikk folytatása a rákos sejteket is tartalmazó vér szűrését mutatta be, így bizonyítva a mikrofluidikai eszköz használhatóságát [S12].

4.1. Felhasznált anyagok és besugárzási paraméterek

A PBW besugárzások során felhasznált rezisztanyagok, és a besugárzási paraméterek leírását célszerűen együtt mutatom be a fejezet elején, mert ezek sok esetben hasonlóak vagy azonosak voltak.

A rezisztanyagok közül az alkalmazásokhoz csak kétféle polimert – PMMA-t és PDMS-t – használtuk, a többi anyagot a PBW fejlesztésekről szóló fejezetben már tárgyaltam.

A poli(metil-metakrilát) (poly(methyl methacrylate), PMMA) anyag több különböző néven is ismert, kereskedelmi forgalomban is kapható (Lucite, Plexi, Akiril, Perspex stb.). A PMMA egy átlátszó hőre lágyuló műanyag, amelyet gyakran

használnak üvegek helyettesítésére, a kisebb sűrűsége és ütésállósága miatt. Kiváló átlátszósága és ellenállóképessége miatt nagyon sokféle területen alkalmazzák. Néhány példa: autóipar (lámpabúrák), repülőgépek ablakai, akváriumok fala, üvegházak fala, stb. Mikrostruktúrák készítésére a LIGA és a PBW módszerek során is használják. Mi a PMMA lemezeket a Röhm cégtől szereztük be (Plexiglas® GS233). Ebben a PMMA-ban a láncmolekulák nagy molekulatömegűek ($>10^6$). A sűrűség $1,19 \text{ g/cm}^3$, ami SRIM [19] szimulációk alapján azt jelenti, hogy a 2 MeV energiájú protonok behatolási mélysége $\sim 63 \mu\text{m}$. Az előhívást a „GG-developer” és az „IPA-víz” maratószerekben végeztük [104]. Poralakban is beszerezhető, acetonban oldható, így vékony rétegek készítésére is alkalmas centrifugálás (spin-coating) módszerrel egyenletesen szétterítve.

A poli(dimetilsziloxán) (poly(dimethylsiloxane), PDMS) széleskörűen használt szilícium alapú szerves elasztomer, számos kiváló anyagi tulajdonsággal rendelkezik. A látható és a közeli infravörös tartományban átlátszó, jó a gázáteresztő képessége, térhálósítható, jól tűri a nagy hőmérséklet-változásokat (-45°C és $+200^\circ\text{C}$ között). A PDMS-t számos területen alkalmazzák: pl. gyakran használják biológiai kísérletekben, és a klinikai gyakorlatban az alacsony toxicitása és biokompatibilitása miatt. Mikro- és nanotechnológiában is gyakori: elsősorban mikrofluidikai eszközök készítésére használják (primer öntőformára öntve sokszorosítják a mintázat negatívját). A kiváló kémiai stabilitásának, kis kioltási tényezőnek, és nagy optikai tisztaságának köszönhetően (mikro-) optikai elemek készítésére is kiváló.

A Dow-Corning cégtől beszerzett Sylgard 184 kitet használtuk a PDMS minták elkészítésére. A polimer alap és a vulkanizálószer keverési térfogat aránya 10:1 volt. Tömbi (vastag) minták készítéséhez a bekevert anyagot Petri-csészékbe öntöttük, és hagytuk vulkanizálódni. Az így elkészített PDMS sűrűségét piknométerrel mértük meg, ami $\sim 1,011 \text{ g/cm}^3$ értékűnek adódott. SRIM [19] számításokat végeztünk, amelyek azt mutatták, hogy a 2 MeV energiájú protonok a vastag PDMS mintákba $\sim 85 \mu\text{m}$ mélységig hatolnak be. Vékony mintákat a folyékony, nagy viszkozitású polimer alap hordozóra centrifugálásával készítettünk. A centrifugálás fordulatszámának és idejének megfelelő megválasztásával tervezhető az elkészített réteg vastagsága, ezt előzetesen kalibráltuk. A centrifugálás után a mintákat hőkezeltük. A rétegek a protonok behatolási mélyégénél vékonyabbak voltak, így a protonok a PDMS rétegen túl, a hordozóban állnak meg. A pályájuk végén lévő laterális kiszélesedés is csak a hordozóban történik, így a PDMS-ben egyenes sima oldalfalak keletkeznek. Folyékony és vulkanizálódott (gumiszerű) mintákat is használtuk a különböző célú besugárzásokhoz.

A besugárzásokat a Szingapúri Egyetemen, az Atomkiban, valamint a Cseh Tudományos Akadémia Prága közelében, Řežben működő Magfizikai Intézetének Tandetron Laboratóriumában végeztük.

Szingapúrban a High Voltage Engineering Europa cég által gyártott 3,5 MV névleges terminálfeszültségű SingletronTM gyorsítót használtuk a mellette működő ion nanoszondával [A1]. Az itt használt 2 mm vastag PMMA minták tipikus laterális mérete $1,5 \text{ cm} \times 0,5 \text{ cm}$ volt. A besugárzásokhoz 1,5 és 2,0 MeV energiájú protonokat használtunk, melyek behatolási mélysége a PMMA-ban 39 illetve $62 \mu\text{m}$. Az alkalmazott fluens 25 és 160 nC/mm^2 között volt (azaz $\sim 1,6 \times 10^{13} - 1,0 \times 10^{14} \text{ ion/cm}^2$).

A nyaláb áramát 5–10 pA közötti kis értéken tartottuk, mert a korábbi eredményeink azt mutatták, hogy nagyobb áramok használata esetén a felületen hólyagosodás és buborékképződés jelent meg. Ilyen kis áramok mellett a nyaláb mérete szubmikronos volt, tipikusan 300–400 nm.

Debrecenben a makronyalábos besugárzásokat az Atomki PIXE kamrájában végeztük [105]. A kamra elektromosan szigetelt elhelyezése lehetővé tette az áram és töltés mérést. A besugárzások közben PIXE spektrumokat gyűjtöttünk a Canberra Si(Li) detektorral és az Atomki NZ-881 digitális jelfeldolgozó elektronikával. A PIXE spektrumokban a PMMA minták esetén csak az üres háttér volt jelen karakterisztikus csúcsok nélkül, PDMS esetén pedig a szilícium K-vonalán kívül nem voltak más karakterisztikus röntgen csúcsok, ami a minták tisztaságára utalt. A minták töltődését egy szénszálas izzó elektronforrással semlegesítettük. A protonnyalábot egy 0,51 μm vastag nikkell szórófóliával homogenizáltuk, és az átmérőjét 5 mm-re kollimáltuk.

A mikronyalábos besugárzásokat az Atomki pásztázó ionmikroszondjánál végeztük [S1]. A protonenergia általában 1–2 MeV között volt. A nyalábáram 5–60 pA, amit 1–3 μm méretűre fókuszáltunk. A pásztázott terület tipikusan 1–2 mm oldalélű, négyzet alakú volt. A mikroszonda kamrában az évek során több különböző Si(Li), és SDD típusú röntgendetektor is működött PIXE analitikai célokra. Ezeket a detektorokat a minták tisztaságának ellenőrzésére használtam. A mintákra felvitt töltés monitorozását a visszaszórt ionok jelére alapoztam. Első lépésben a „beam chopper” nyalábszaggatót kalibráltam az abszolút töltésméréshez. Ehhez egy mini Faraday-csészét használtam [24]. A visszaszórt ionok hozamát egy p-i-n dióda rendszerrel gyűjtöttem, ami 4 db egyenként 100 mm² területű detektorból állt. Bizonyos esetekben szükség volt a szigetelő minták felületén felhalmozódó töltés semlegesítésére, ehhez egy wolframszálas izzólámpát használtam, amelynek előzőleg eltávolítottam az üvegbúráját.

Řežben [A2] – miután többféle nehézionnal is demonstráltam a mikronyaláb fókuszálás lehetőségeit – mikromegmunkáláshoz nitrogén nyalábot használtunk 10,5 MeV energiával N⁴⁺ töltésállapotban. A pásztázott terület 2 × 2 μm^2 területű négyzet volt, itt hozunk létre különböző mikrostruktúrákat (párhuzamos vonalak, gyűrűk, konvex mikrolencsék, hullámvezetők stb.). A besugárzott fluens számításánál figyelembe kell venni a 4-szeres töltésállapotot, így a használt $7,8 \times 10^{11}$ – $7,8 \times 10^{13}$ ion/cm² részecske fluens 1,25 – 125 nC/mm² felületi töltéssűrűséget jelent. A besugárzáshoz használt áramerősség 10–200 pA között volt. Hosszú hullámvezetők készítése hibrid pásztázással lehetséges. Ezt azt jelenti, hogy a függőleges tengely mentén a mintát mozgattam (stage scan), míg vízszintesen a nyalábot (beam scan).

4.2. Mikrooptikai alkalmazások

4.2.1. Passzív hullámvezető PMMA-ban

A polimerek érdekes anyagok, számos különleges tulajdonsággal rendelkeznek, pl. nagy optikai tisztaság, kis csillapítás, stb. Napjainkban a különböző polimereket számos területen alkalmazzák pl. a mikrohullámú, elektronikus és fotonikus rendsze-

rekben [106]. Ez a nagymértékű felhasználás az egyszerű gyártásnak és feldolgozhatóságnak köszönhető. A polimerek szerkezete egyszerűen tervezhető és módosítható, így a fizikai tulajdonságaik is hangolhatók.

A szerves anyagokkal szemben (amilyenek pl. a LiNbO_5 vagy InP), a polimer optikai hullámvezetők költséghatékony megoldást biztosítanak számos telekommunikációs alkalmazásban. Néhány gyakori polimermegmunkálási technika: ionimplantálás [107], fotolitográfia és reaktív ionmarás [108], [109], és a fotokémia [110], [111]. Bár az utóbbi módszerek számos feldolgozási lépést igényelnek és hosszú a gyártási idő. Az ionimplantáció egyik legnagyobb előnye a hullámvezetők egyszerű előállításuk kontrollálható mélységben, ami az ionenergiával hangolható, mert az ionok jól meghatározott pályán és mélységig jutnak el a polimerekben.

MeV energiájú ionnyalábokat implantáltak Ruck és munkatársai [112] Si és Ni maszkon keresztül. Hong és munkatársai [113] pedig sík hullámvezetőket készítettek PMMA-ban. Roberts és von Bibra [114], [115] direkt-írásos PBW módszerrel készítettek hullámvezetőket olvasztott szilícium-dioxidban a Melbourne-i Egyetem mikroszondáján. A direkt írásos fókuszált MeV energiájú könnyű ionok (pl. protonok) használatának előnye, hogy az eltemetett hullámvezetők készítéséhez nem szükséges maszk használata.

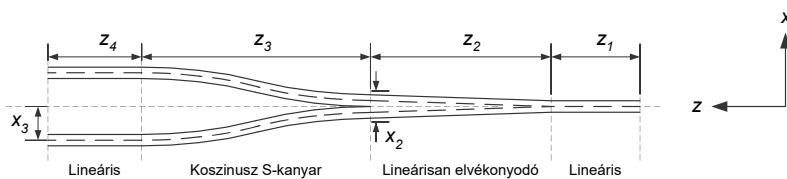
Ebben a munkában a PBW módszert alkalmazva egy szimmetrikus Y-osztót készítettünk PMMA-ban. A PBW módszerhez szubmikronos méretű nyalábot használtunk, amivel alkalmas anyagokra lehetséges írni, pl. polimerek, szilícium-dioxid, kvarc, zafír, stb. A hullámvezetők készítése a 3D struktúrák [116] előállításánál annyival egyszerűbb, hogy itt nem szükséges a kémiai marás a besugárzás után.

A PBW módszerrel tetszőleges mintázat kialakítható (pl. Mach-Zehnder-interferométer, irányváltók stb.). A szimmetrikus Y-osztó tervrajza az 52.(a) ábrán látható, ezt a hullámvezetőt használtuk a fény két ágra osztásának igazolására. A szubmikronos nyalábméret nagyon fontos volt, mert az optikai pályák pontos megrajzolása biztosítja, hogy az elkészült hullámvezető kis veszteségű legyen. A pontosságnak a legnagyobb jelentősége a koszinusz S-kanyar és a lineáris elvékonyodó rész találkozásánál.

Ezen munka másik célja volt az is, hogy a PMMA-ban készítendő hullámvezetők készítéséhez optimalizáljuk a PBW paramétereit. Fontos volt meghatározni az optimális besugárzási paramétereit (pl. fluens, energia, áram), így elkerülendő a nemkívánt roncsolás (pl. a felület felhólyagosodása, buborék-képződés stb.) [117].

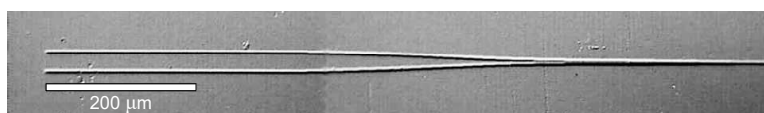
A maszkos litográfiai technikákkal ellentétben a direkt-írásos módszerek nem használhatók tömegtermelésre. Viszont a PBW biztosítja a tetszőleges alakzat besugárzásának a lehetőségét, így optikai eszközök gyors prototípusainak elkészítését.

Az Y-osztó hullámvezetők szélessége $10\ \mu\text{m}$, a hosszuk 1 és 2 mm volt. A protonnyalábot a PMMA minták felületén mágnesesen pásztáztuk. A besugárzások után a minták széleit le kellett polírozni, így a hullámvezetők végei láthatóvá váltak és a felületi durvaság $60\ \text{nm}$ -nél kisebb volt. A hullámvezetők bemenetére monokromatikus ($633\ \text{nm}$) fényt csatoltunk (3M FS-SN-3224 típusú egymódusú optikai szálon, magátmérő $\sim 4\ \mu\text{m}$). Az optikai szál vége és a PMMA hullámvezető csatolásához alkalmas olajat használtunk (Nye Optical Products, NCF-446, $n = 1,46$), így a PMMA felületén minimalizálva a szóródást. A kilépő fényt CCD kamerával figyeltük meg



Szegmens	1,0 mm Y-osztó	2,0 mm Y-osztó
Lineáris	$z_1 = 175 \mu\text{m}$	$z_1 = 350 \mu\text{m}$
Lineárisan elvékonyodó	$x_2 = 20 \mu\text{m}, z_2 = 175 \mu\text{m}$	$x_2 = 20 \mu\text{m}, z_2 = 350 \mu\text{m}$
Koszínusz S-kanyar	$x_3 = 12,5 \mu\text{m}, z_3 = 500 \mu\text{m}$	$x_3 = 25 \mu\text{m}, z_3 = 1000 \mu\text{m}$
Lineáris	$z_4 = 150 \mu\text{m}$	$z_4 = 300 \mu\text{m}$

(a)



(b)

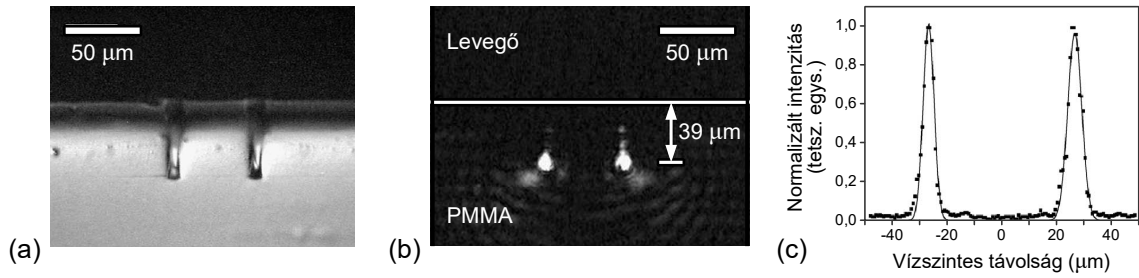
52. ábra. (a) Az Y-osztó hullámvezető tervdrajza és paramétereit. (b) Az 1 mm hosszú Y-osztó hullámvezető differenciális interferencia kontraszt (DIC) mikroszkópos fényképe. A besugárzást 1,5 MeV energiájú protonnyalábbal végeztük 75 nC/mm^2 fluenssel ($\sim 4,7 \times 10^{13} \text{ ion/cm}^2$).

mikroszkópon keresztül ($20\times$ nagyítás, hosszú munkatávolság, $\text{NA} = 0,3$). A képeket 8-bites módban vettük fel, azaz 256-szintű szürkeskálán.

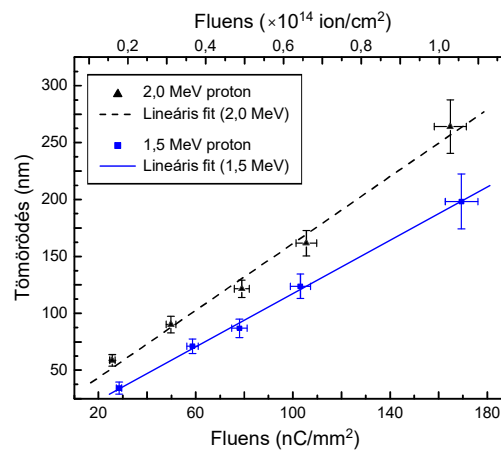
Az atomerő-mikroszkóp (AFM) kiváló eszköz a besugárzás által okozott felületi változások mérésére (pl. felületi károsodás, a besugárzás homogenitása, felületi tömörödés, stb.). A besugárzott vonalak mentén kopogtató üzemmódban (tapping mode) képeket vettünk fel egy AFM Digital Instruments DimensionTM 3000 SPM mikroszkóppal. A pásztázott terület $82 \times 82 \mu\text{m}^2$ volt, a hullámvezető ágai a lassú pásztázás irányával voltak párhuzamosak.

Az 52.(b) ábra az 1 mm hosszú Y-osztó felülnézeti képét mutatja. A polimer kémiai és fizikai tulajdonságainak megváltozása az anyag tömörödéséhez és sűrűségének megnövekedéséhez vezet, így a törésmutatója is megnő. A törésmutató változás legnagyobb mértékű az ionok pályájának a végén, ahol az energialeadás a legnagyobb. Ez a nagy törésmutatójú réteg a hullámvezető magja. Ezt a térfogatot minden oldalról kisebb törésmutatójú anyag veszi körül: a besugárzott tartomány alatt és mellett besugárzatlan PMMA; a besugárzás irányából érkező ionok a pálya vége előtt, a Bragg görbének megfelelően kevesebb energiát adnak le, így a törésmutató változásnak kisebbnek kell lennie. (Ezt a jelenséget később bizonyítottuk be, ld. a 4.2.2. fejezetben [D2].) A hullámvezető magjának nagyobb, a köpenynek kisebb a törésmutatója, így a fényvezetés megvalósulhat. A polírozott oldal differenciális interferencia kontraszt (DIC) fényképe az 53.(a) ábrán látható.

Az 53.(b) ábra a megvilágított Y-osztót mutatja. A hullámvezető magja kb. $10 \mu\text{m}$ méretű laterálisan és vertikálisan is. A hullámvezető a PMMA felülete alatt $39 \mu\text{m}$ mélységben helyezkedik el, ami megfelel a SRIM számítások eredményeinek. A halványan látható interferencia vonalak oka a PMMA belső felületéről történő



53. ábra. (a) Az Y-osztó DIC fényképe. (b) 633 nm hullámhosszú fény kilépése a 2 mm hosszú Y-osztóból. (c) A kilépő fény normalizált intenzitáseloszlása. A folytonos vonal az eloszlás Gauss-illesztését mutatja.



54. ábra. A PMMA tömörödése a beeső protonfluenssel nő, a kétféle protonenergiánál hasonló mértékű.

reflexió. Az 53.(c) ábrán a két ágban mérhető intenzitás eloszlása látható. Az intenzitáseloszlásban mért adatokat Gauss-függvénnyel illesztettük, ezt a folytonos vonal mutatja. A Gauss-görbék alatti területek integrálásával a két kar közötti intenzitás aránya nyerhető, ami 0,45/0,55 értékűnek adódott.

A PMMA felületén a besugárzás által okozott tömörödést is vizsgáltuk. Az AFM mérésekből azt a következtetést vontuk le, hogy a hullámvezető felülete jó minőségű, és a tömörödés mértéke a besugárzott fluenssel nő. Az 54. ábra a mért felületi tömörödést mutatja a hullámvezetők mentén az ionfluens függvényében a 1,5 MeV és a 2 MeV energiájú besugárzások után. A benyomódás mindkét energia esetén <300 nm, ez a benyomódás a protonok behatolási mélységéhez – 1,5 MeV-nél 39 μm , 2 MeV-nél 62 μm – viszonyítva elhanyagolható. Ezért a PMMA felületének módosítása elhanyagolható mértékben befolyásolhatja a hullámvezető mélységét.

Passzív optikai hullámvezetőt készítettem PBW módszerrel PMMA-ban a felület alatt a protonok behatolási mélysége által meghatározott mélységben [D1].

4.2.2. PMMA törésmutató változása protonbesugárzás hatására

A következő munkában az volt a célunk, hogy a PBW módszer során használt protonbesugárzás hatására létrejövő törésmutató-növekedést megvizsgáljuk az ionok behatolási mélységének függvényében.

Többféle mintát és besugárzási paramétert alkalmazva szisztematikus besugárzásokat készítettünk. A törésmutató változás mérésére többféle módszert is használtunk, de a legtöbb esetben a túl kismértékű effektus miatt ezek eredménytelenek voltak.

Ellipszometria módszerrel – amit a Szegedi Egyetem Optikai és Kvantumelekttronikai Tanszékén végeztünk – meg tudtuk mérni az optikai paramétereket a felület közelében és a Bragg-görbe mentén. Az ellipszometria a visszavert fény polarizációs állapotát méri. Ez a visszaverő felület minőségétől függ (pl. a fizikai szerkezettől, a réteg vastagságától, az optikai állandóktól, felületi durvaságtól, stb.), ezért az ellipszometria hatékony eszköz az optikai paraméterek mérésére.

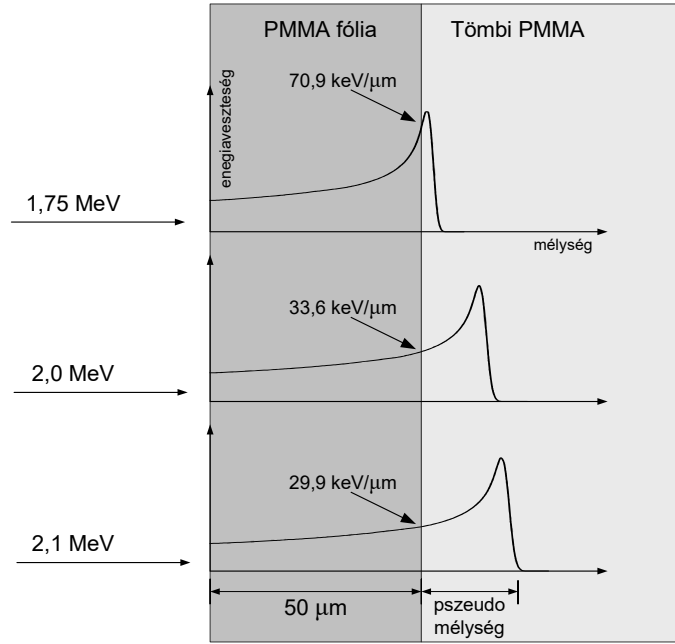
Mivel a PBW módszer során leggyakrabban 2 MeV protonenergiát használunk, ezért ezekhez a mérésekhez is ugyanezt az energiát választottuk. A minták felületére felvitt töltést is a PBW-hez hasonló értékre állítottuk be: 100 nC/mm^2 (azaz $6,25 \times 10^{13} \text{ ion/cm}^2$). A minták felhólyagosodásának elkerülése miatt a besugárzásokat maximum 1 nA árammal végeztük. A nyalábfolt átmérője 5 mm^2 volt, ami egyrészt szükséges volt az ellipszometria számára; másrészt az alkalmazott kis áramerősség mellett elegendően kis áramsűrűséget jelent, így a besugárzások eredményeképpen sima és krátermentes felületeket kaptunk.

Az első méréseink során csak nagyon kismértékű változást tapasztaltunk a törésmutatóban. Ennek az oka az volt, hogy az ellipszometria a felületközeli rétegek törésmutatójára érzékenyebb, mint a mélyebben fekvő rétegekre. Ezért – ötletem alapján – egy újabb besugárzás-sorozatot terveztünk és hajtottunk végre, amikor a vizsgálandó réteget a felület közelébe felhoztuk.

Ebben a kísérletben – amit „PMMA fólia módszernek” neveztünk el – egy vékony PMMA fóliát helyeztünk a tömbi PMMA minta elé, és a protonenergiát úgy változtattuk, hogy a protonok behatolási mélysége éppen a szubsztrát felső rétegében legyen, azaz a felület közelében (ld. 55. ábra). A besugárzás után a fóliát eltávolítva a tömbi PMMA-ban a behatolási mélység közelében lévő réteg olyan közel került a felülethez, ami már az ellipszometria számára érzékeny tartomány volt.

A PMMA fólia vastagsága $50 \mu\text{m}$ volt. A fólia éppen annyira lassította le a beérkező protonokat, hogy azok a tömbi PMMA felület közelében érték el a Bragg-csúcsot, azaz ott adták le a legtöbb energiát. Mivel a használt fólia vastagsága állandó volt, ezért a Bragg-csúcs közelében az energialeadás mértékét a beérkező protonok energiájának változtatásával tudtuk finomhangolni. Ezért a protonenergiát 1,7–2,1 MeV között változtattuk. Az energiaveszteség számításához a SRIM programot használtuk [19].

Az ellipszometria két szöget mér: a Ψ a relatív amplitúdó változást, a Δ pedig a relatív fázisváltozást jellemzi, amit a visszaverődéskor a fényben az elektromos térerősség vektor komponense szenved.



55. ábra. A tömbi PMMA felületére helyeztünk egy PMMA fóliát, és a proton-energiát 1,7–2,1 MeV között változtattuk. Így a protonok hatótávolságának végét a tömbi PMMA felületének a közelébe hoztuk.

$$\Delta = (\delta_{pr} - \delta_{pi}) - (\delta_{sr} - \delta_{si}), \quad (1)$$

$$\operatorname{tg} \Psi = \frac{R_p / A_p}{R_s / A_s}, \quad (2)$$

ahol p és s az elektromágneses hullám beesési síkjában lévő és erre merőleges komponst jelöli. A és R a visszaverődés előtti és utáni amplitúdót jelöli. Továbbá, δ_i és δ_r a beeső (incident), és a visszavert (reflected) fény fázisát jelöli. Ezen mennyiségek a vizsgált mintáról történő komplex visszaverődéshez kapcsolódnak az ellipszometria alapegyenlete szerint:

$$\operatorname{tg} \Psi \cdot e^{i\Delta} = \frac{\tilde{r}_p}{\tilde{r}_s}, \quad (3)$$

ahol \tilde{r}_p és \tilde{r}_s a felületről történő komplex visszaverődés a p és s síkban polarizált fény esetén. Tömbi anyag esetén ezeket a Fresnel-egyenlet írja le. Inhomogén réteget tartalmazó anyag esetén ezek az együtthatók a rétegek vastagságára és optikai tulajdonságaira vonatkozó információt tartalmazzák.

A Ψ és Δ értékek helyett gyakran a pszeudo-törésmutató $\langle n \rangle$, illetve a pszeudo-kioltási tényező $\langle k \rangle$ használatos. Ha egy homogén tömbi anyagon ugyanazt a Ψ és Δ értékeket mérnénk, akkor annak a törésmutatója és kioltási tényezője $\langle n \rangle$ és $\langle k \rangle$ lenne. A definíciójuk szerint $\langle n \rangle$ és $\langle k \rangle$ a Ψ és Δ értékekből a Fresnel egyenletekkel számítható, és ebben az esetben a tömbi minta valós n és k értékeivel megegyeznek.

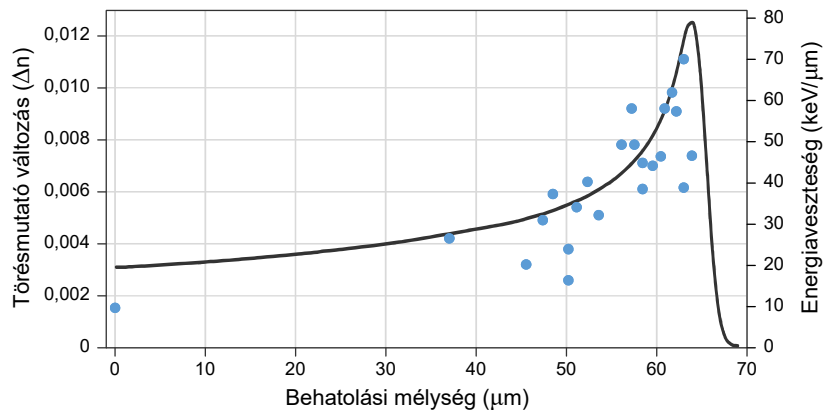
A Ψ és Δ értékekből származtatható mélységi információ néhány μm nagyságrendű. Ezért a felület közelében, ahol a protonok energiavesztése lassan változik

a mélységgel, a mintákat tömbi (homogén) mintáknak tekinthetjük. Viszont a behatolási mélység végénél – amikor az $50\ \mu\text{m}$ vastag PMMA fóliát eltávolítottuk – a Bragg-görbe gyorsan változik. Ebben az esetben – ha feltételezzük, hogy az ionok által okozott törésmutató-változás arányos a protonok energialeadásával – a Bragg-görbéhez hasonló alakú a mélységi függést kell kapnunk. Ezért a $\langle n \rangle$ értékeket egy alkalmas eloszlással modelleztük. Ha megfelelően skálázzuk a modellt a mért értékekhez, akkor jó egyezést kapunk. A modellezés a Woollam ellipszométerekhez kifejlesztett WVASE programmal történt [118].

A spektroszkópai ellipszométeres méréseket a $250\text{--}1000\ \text{nm}$ hullámhossz tartományban 476 különböző hullámhosszon végeztük. A beesési szöget a PMMA Brewster szögének közelében választottuk meg, így a méréseket 50° , 52° , 54° , 56° , 58° szögeknél végeztük. Ilyen beesési szögek mellett a mért Ψ és Δ gyorsan változnak. Így az adatok a különböző beesési szögeknél jelentősen különbözők lesznek, ami lehetővé teszi a vizsgált minták pontosabb meghatározását. A fény visszaverődése során megvilágított terület elliptikus alakú volt. A kistengely hossza $1\ \text{mm}$, a nagytengely hossza pedig $\sim 1,5\text{--}2\ \text{mm}$ között változott a beesési szögtől függően. A PMMA átlátszó természetéből adódóan a minták hátsó felületéről visszavert fény is megjelent volna az analizátorban, ezért ezt egy megfelelő méretű apertúrával ki kellett takarni.

A spektroszkópai ellipszometria egyéb optikai paraméterek mellett elsősorban a törésmutató meghatározására alkalmas módszer, képes 10^{-3} nagyságrendű törésmutató különbségek meghatározására [119]; esetünkben a PMMA mintákon ilyen mértékű változások mérése volt szükséges. Minden minta esetén a PMMA felületén a besugárzott területen kívül is mértünk egy-egy háttér pontot, így a törésmutató különbségeket képeztük ($\Delta n = n_{\text{modified}} - n_{\text{blank}}$).

Az így meghatározott pszeudo-törésmutatók a besugárzott PMMA felületén minden minta esetén és minden vizsgált hullámhosszon nagyobbak voltak, mint a besugárzatlan PMMA felületeken.



56. ábra. A törésmutató-változás PMMA-ban $633\ \text{nm}$ hullámhosszon az ionok behatolási mélységének függvényében. Összehasonlításképpen a Bragg-görbe is látható, a mérési adatokkal jó egyezésben.

A vizsgált protonenergia tartományban a Bragg-görbék hasonlóan viselkednek, azaz a protonok sok ütközés hatására lassan veszítik el az energiájukat, ezekben

az egyedi ütközésekben kicsiny energiaátadás történik a minta elektronjai számára. A törésmutató értékeket megmértük 1,7–2,1 MeV energiájú protonok esetén 50 μm PMMA fólián való áthaladás után, ezeket hozzárendeltük a 2 MeV energiájú protonokra kiszámított mélységekhez. Kimutattuk, hogy a törésmutató növekedése 0,01 nagyságrendű volt, ami a detektálási határnál 10-szer nagyobb. A törésmutató legnagyobb mértékben a behatolási mélység végénél nőtt, jó egyezésben a Bragg csúcs helyével, ahol a protonok energiavesztése a legnagyobb. Az 56. ábra ezeket az eredményeket mutatja, továbbá a 2 MeV protonokhoz tartozó Bragg-görbét is ábrázoltam ugyanezen mélység skálán.

Mivel a mért törésmutató változások és a Bragg-görbe között szép egyezés látható, levontuk azt a következtetést, hogy a fenti feltételezésünk helyes volt, azaz a törésmutató változás elsődleges oka a protonok energialeadása (így a következtetésünk az irodalomban olvasható [112] referenciával is megegyezik). Az ionok pályájának végénél implantálódás is bekövetkezik.

PMMA polimer esetén elsőként határoztam meg a protonbesugárzás hatására bekövetkező törésmutató-változás nagyságát a mélység függvényében ($>0,01$; ez elegendő a hullámvezetés létrejöttéhez) [D2].

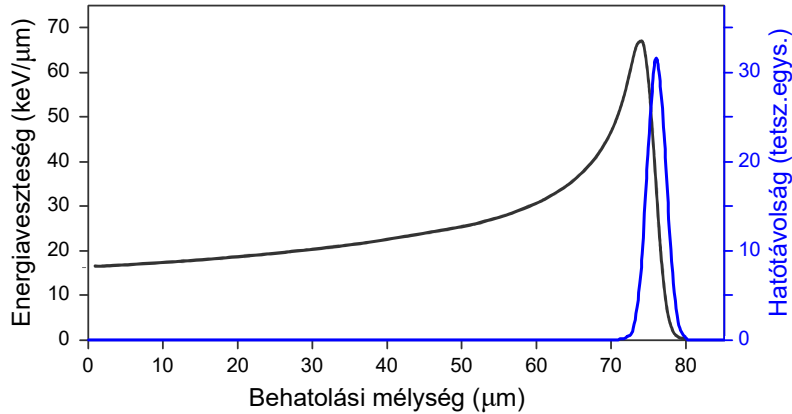
4.2.3. PDMS törésmutató változása protonbesugárzás hatására

A PDMS számos fizikai és kémiai tulajdonságaiban jelentős változás történik lézer- és ionbesugárzások hatására, ezért ilyen mikromegmunkálási technikákhoz rezisztanyagként használható. PDMS-ből gyakran készítenek optikai eszközöket, ezért az ionbesugárzás hatására bekövetkező törésmutató-változás ismerete nagyon lényeges.

A PDMS-t általában replika anyagként használják, viszont protonmikronyalábos besugárzása direktírasos célokból, és ennek alkalmazásai (pl. mikrooptikai célokra) egy teljesen új koncepció. A cikk írásának idején csupán néhány cikk volt még az irodalomban más hatásokra bekövetkező törésmutató-változásra vonatkozóan. Néhány esetben a kezelés hatására jelentősen megváltozott a PDMS törésmutatója, aminek oka az összetétel és a szerkezet változása. Infravörös lézert alkalmazva $\Delta n = 2 \times 10^{-3}$ [120], míg excimer UV lézerrel ennél nagyobb $\Delta n = 4 \times 10^{-2}$ [121] volt az elért maximális törésmutató-változás. Ionok által indukált törésmutató-változással PDMS-ben eddig mások nem foglalkoztak.

MeV energiájú ionok az anyagban való fékeződésük során a felület közelében kevesebb energiát adnak le, mint a mélyebb rétegekben. Az energialeadást a mélység függvényében a Bragg-görbe írja le. A bombázó ionok által leadott energia legnagyobb része a céltárgy atomok ionizációjára fordítódik. Az ionizáció az ionok pályájának mentén növekszik, a maximumát a Bragg-csúcsban éri el, ami röviddel az ionok pályájának a vége előtt van. Az ionok hatótávolsága az a mélység, ahol az ionok energiája nullára csökken. Ezt mutatja az 57. ábra.

Mivel a bombázó ionok által leadott energia a felület közelében kisebb, a mélyebb rétegekben (a Bragg-csúcsnál) nagyobb, így a korábbi PMMA-nál kapott eredményeink alapján [D1], [D2], itt is felmerült az ötlet, hogy fókuszált MeV ionokkal eltemetett hullámvezetőket tudunk-e írni PBW technikával.



57. ábra. *Energialeadás a mélység függvényében (Bragg-görbe). A leadott energia legnagyobb része a céltárgy atomok ionizációjára fordítódik. Az egyedi ionok a pályáinak vége statisztikus eloszlással írható le. Az ionnyaláb hatótávolságát ezen eloszlás csúcsának helyével szokás értelmezni, ez kissé a Bragg-csúcsnál mélyebben fekszik.*

Ezért ennek a munkának a célja az volt, hogy meghatározzuk a protonokkal besugárzott PDMS törésmutató-változás mélységi profilját.

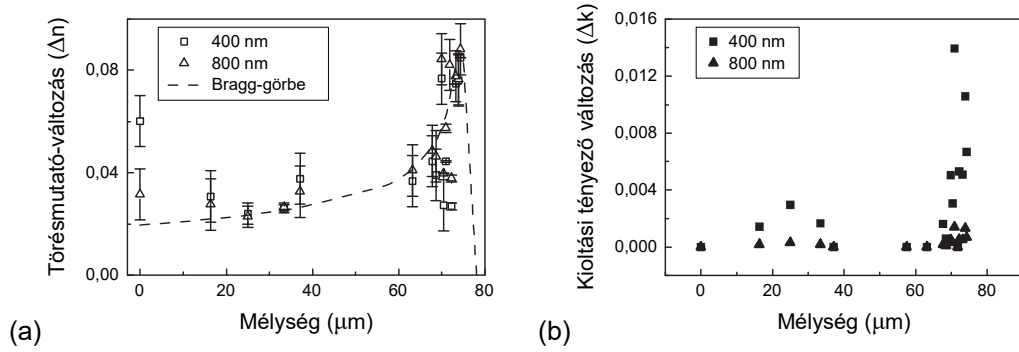
A besugárzásokhoz most is a PMMA-nál már bevált „fólia módszert”, az optikai paraméterek meghatározására pedig az ellipszometria technikát alkalmaztuk. Szintén az előző munkához [D2] hasonlóan, most is feltételeztük, hogy a törésmutató változás egy adott mélységben az ott leadott energiával (linear energy transfer, LET) arányos.

A protonok energiáját 1,265 és 2,0 MeV között változtattuk. Abszorbensként 9 vagy 18 μm vastag alumíniumfóliákat használtuk (ehhez praktikusán 1 vagy 2 réteg háztartási alufóliát használtunk, miután azok vastagságát mérésekkel ellenőriztük). Így a protonok a minta felületét 170 keV – 2,0 MeV energiával érték el. SRIM számolások [19] azt mutatták, hogy 2 MeV energiájú protonok esetén a legnagyobb hatótávolság (behatolási mélység) PDMS-ben $\sim 79 \mu\text{m}$, míg a maximális energiavesztés (a Bragg-csúcs) $\sim 76 \mu\text{m}$ mélységben van.

Az ellipszometriai méréseket az előző munkához hasonlóan most is a Szegedi Egyetem Optikai és Kvantumelektronikai Tanszékén végeztük.

A tömbi PDMS anyag pszeudo-törésmutatóját több helyen megmérve 0,01 mértékű fluktuációt figyeltünk meg $\sim 10 \text{ mm}$ laterális skálán. Ezért minden besugárzott mintán a besugárzási területen kívül 3 különböző pontban is mértünk, ezt tekintve referencia értéknek. A besugárzott területeken belül is minden mintán legalább 3 pontban mértünk.

Az 58.(a) ábrán ábrázoltam a besugárzás hatására keletkező törésmutató-változást. A besugárzott térfogatban szignifikáns a törésmutató-növekedés. A felület és $\sim 60 \mu\text{m}$ közötti tartományban 0,03–0,04, míg $\sim 65 \mu\text{m}$ alatt 0,04–0,06, a Bragg-csúcsnál a törésmutató már 0,08 körüli értékkel nőtt a besugárzatlan anyaghoz képest. Ez lényegesen nagyobb, mint a hasonló körülmények között kapott törésmutató-változás PMMA-ban. Ilyen nagymértékű törésmutató-növekedéssel el-



58. ábra. (a) A mért törésmutató-változások 400 nm (négyzetek) és 800 nm (háromszögek) hullámhosszon a mélység értékekhez rendelve. A skálázott Bragg-görbe összehasonlításuképpen szaggatott vonallal jelölve. (b) A kioltási tényező a mélység függvényében.

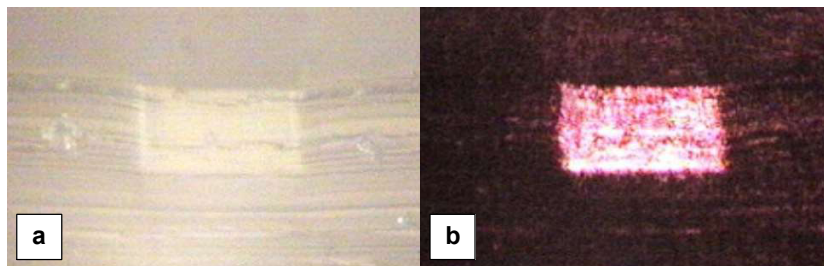
érhető a SiO_2 törésmutatója [122]. (Ilyen irányú további kísérleteinkben megfigyeltük a besugárzás hatására keletkező kémiai változást [123] és a keménység-változást is [D4], ezek arra utalnak, hogy a PDMS szerkezete egyre inkább szilikátszerű.)

A törésmutató-változás mélységi függése az anyag szerkezetének megváltozásával magyarázható, ami arányos az anyagban leadott energiával. Mivel a protonok energialeadása a Bragg-csúcsban a legnagyobb, itt történik a legtöbb kémiai változás is, és itt lesz a legnagyobb a törésmutató-változás.

Néhány hónap elteltével megismételtük az ellipszometriás méréseket. Az eredmények azt mutatták, hogy a nagyobb mélységekhez tartozó nagyobb Δn értékek a kezdeti értékek körül fluktuálnak, tehát a relaxálódás nem volt jelentős, azaz a kialakított törésmutató-eloszlás stabilnak bizonyult.

Az ellipszometria lehetővé teszi a minták abszorpciós tulajdonságainak meghatározását is, mivel a mért komplex törésmutató képzetes része a kioltási tényező. A kioltási tényező fordítottan arányos a fény behatolási mélységével egy adott hullámhosszon. Az 58.(b) ábrán látható, hogy a besugárzás a kioltási tényezőt is megnöveli. Bár az eredmények a detektálási határhoz közel vannak, a kioltási tényező mélységi profilja 400 nm és 800 nm hullámhosszon hasonló a törésmutató profiljához, azaz a Bragg-görbét követi. A besugárzott PDMS abszorpciója 800 nm hullámhosszon kisebb, mint 400 nm-nél, ezért az eltemetett hullámvezetők alkalmazása az infravörös tartományban ígéretesebbnek tűnik.

Az eredményeink demonstrálása céljából egy integrált optikai hullámvezetőt készítettünk (ld. 59. ábra). A PDMS minták 2,5 mm szélesek és 1 mm vastagok voltak, a hullámvezetők hossza 2500 μm , szélessége 120 μm . A besugárzás $9,38 \times 10^{14}$ ion/ cm^2 fluenssel (1500 nC/ mm^2 felületi töltéssűrűséggel), 950 pA árammal, és $\sim 2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ nyalábmérettel történt. A protonenergia 2 MeV volt. A hullámvezetőkbe monokromatikus 633 nm hullámhosszú fényt csatoltunk be egy lézer forrásból simplex 50/125 FIS ST/PC optikai szálon. A kilépő fényt egy CCD kamerával detektáltuk, amelyet egy hosszú munkatávolságú mikroszkópra rögzítettünk. A fényképek az elkészített hullámvezető működését bizonyítják.



59. ábra. (a) A hullámvezető keresztmetszetének világos látóterű fényképe reflektált fehér fényben, (b) a hullámvezetőből kilépő HeNe lézer 633 nm hullámhosszú fénye.

Poli(dimetil-sziloxán) (PDMS) anyag esetében is elsőként határoztam meg a protonbesugárzás hatására bekövetkező törésmutató-változás nagyságát a mélység függvényében ($\sim 0,08$; ez bőven elegendő a hullámvezetés létrejöttéhez) [D3].

4.2.4. PDMS tömörödés protonbesugárzás hatására

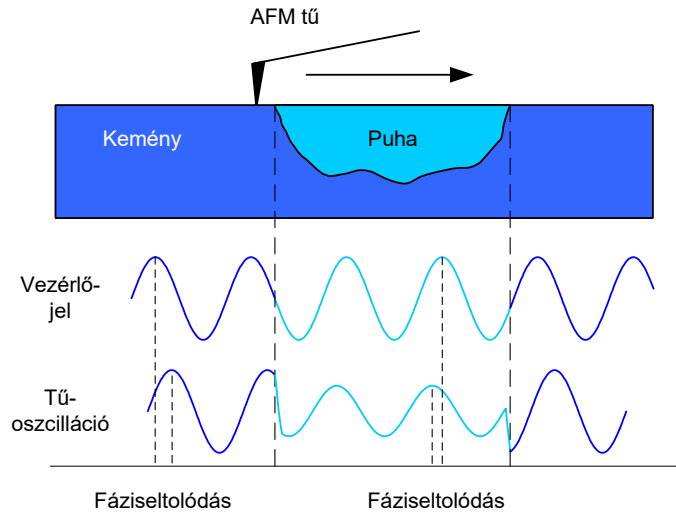
A mikromegmunkálási technológiákban a PDMS-t eddig elsősorban replika módszerrel használták. A közelmúltban mi mutattuk meg, hogy direktíras módon PBW technikával is készíthetők optikai eszközök, pl. diffrakciós rácsok, Fresnel-lencsék [S8], vagy optikai hullámvezetők, az elérhető nagy törésmutató-változás miatt [D3]. Ionbesugárzás hatására a PDMS felület topográfiája jelentősen megváltozik [S7], ezért fontos kérdés ennek a jelenségnek a vizsgálata.

Ezen munka célja a felületi topográfia részletes vizsgálata, a tömörödés mértéke és relaxációja, ezek függése a besugárzó fluenstól és a PDMS struktúrák közötti távolságtól.

A topográfia vizsgálatára atomerő mikroszkópiát (AFM) használtunk kopogtató (tapping) módban, ami lehetővé tette a fázisleképezési technikát. Ez a technika egy hatékony eszköz, amivel nanométeres skálán olyan információk nyerhetők a felületi tulajdonságokról, amik más módszerrel nem érhetők el. A fázisleképezés azt jelenti, hogy monitorozzuk a fáziskésést az AFM tű rezgésének vezérlőjele és a kimenő jel között (ld. 60. ábra).

A fáziskésésben látható változások a minta felületének anyagi tulajdonságaiban történt változásokat jelzik. Ez a módszer lehetővé teszi a magas és alacsony adhéziós területek feltérképezését, a rugalmasság vagy keménység változásainak vizsgálatát, az összetétel változásait, a sűrűdést, viszkoelaszticitást, stb. A fázisleképezés nem igényel többlet ráfordítást sebességben vagy felbontásban: amikor a felületi topográfiát térképezzük, eközben a fázisképek is szimultán megmérhetők.

A besugárzott struktúrák párhuzamos vonalakkól álltak. A vonalak szélességét és egymástól való távolságukat a következők szerint változtattuk: $15 \mu\text{m} / 30 \mu\text{m}$, $25 \mu\text{m} / 50 \mu\text{m}$, $25 \mu\text{m} / 100 \mu\text{m}$ (szélesség / távolság). A vonalak hossza $1000 \mu\text{m}$ volt. A besugárzáshoz 2 MeV energiájú protonokat és 200 pA áramot használtunk. A mikronyaláb mérete $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ volt. Annak érdekében, hogy különböző mértékű



60. ábra. A fázisleképezés – az AFM tű rezgésének vezérlőjele és a kimenő jel közötti fáziseltolás – eredménye függ a felület tulajdonságaitól.

tömörödést érjünk el, ötféle különböző fluenszt használtunk:

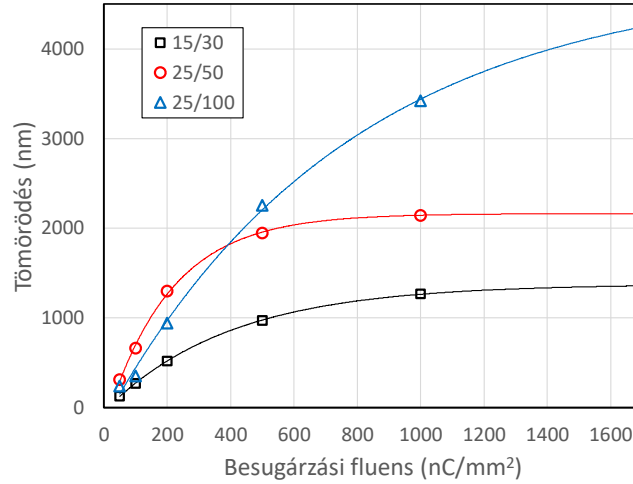
$$\begin{aligned}
 &3,13 \times 10^{13} \text{ ion/cm}^{-2} (=50 \text{ nC/mm}^{-2}), \\
 &6,25 \times 10^{13} \text{ ion/cm}^{-2} (=100 \text{ nC/mm}^{-2}), \\
 &1,25 \times 10^{14} \text{ ion/cm}^{-2} (=200 \text{ nC/mm}^{-2}), \\
 &3,13 \times 10^{14} \text{ ion/cm}^{-2} (=500 \text{ nC/mm}^{-2}), \\
 &6,25 \times 10^{14} \text{ ion/cm}^{-2} (=1000 \text{ nC/mm}^{-2}).
 \end{aligned}$$

A besugárzott területeken nemcsak a felületi topográfia, hanem az adhézió (nedvesítőképeség) is változik [124], [125], ennek oka a polimer kémiai és szerkezeti változása [126]. A felületi topográfia, a fázis és a köztük lévő kapcsolat vizsgálatára egy PSIA XE 100 típusú atomerő mikroszkópot (AFM) használtunk a Szegedi Egyetem Optikai és Kvantumelektronikai Tanszékén. A felvett AFM képeket XEI 1.7.5 képfeldolgozó szoftverrel analizáltuk.

A benyomódások mértékét a topográfiai képekből származtattuk. A különböző szélességű és távolságú vonalak különböző mértékű tömörödést mutattak a besugárzó fluens függvényében. Ha egy közös grafikonon ábrázoljuk ezeket (ld. 61. ábra) világosan látható, hogy a tömörödés mértéke függ a besugárzó fluensztől és a struktúrák egymástól mért távolságától.

A tömörödés fluensfüggése a PDMS kémiai változásával magyarázható. Amikor egy MeV energiájú ion behatol az anyagba a polimerben láncaprózódás történik, ennek hatására többek között illékony termékek keletkeznek. A PDMS polimer esetében a viszonylag magas LET értékű besugárzás hatására elsősorban a következő illékony gázok keletkeznek: hidrogén, metán, etán [127], [128], [129]. Ezek el is távozhatnak a PDMS anyagából. A besugárzott térfogat összezsugorodik a jelentős szerkezeti változás miatt, eközben szilikát származékok keletkeznek (SiO_x) [125].

Ahogy a 61. ábra mutatja, a besugárzott vonalak közötti nagyobb távolság alkalmazásával nagyobb mértékű tömörödés érhető el a PDMS-ben. Ezt a jelenséget a polimer gumyszerű természetével magyarázhatjuk a következőképpen: két besu-

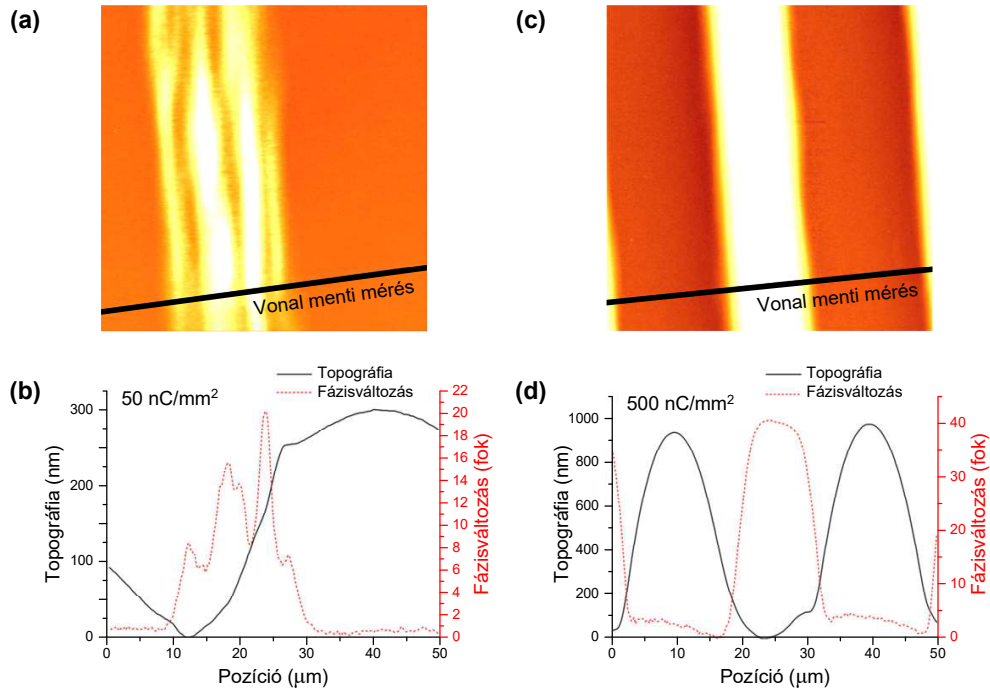


61. ábra. A tömörödés mértéke a besugárzó fluens függvényében, különböző szélességű és távolságú vonalakra. A vonalak az illesztett $y = a - bc^x$ függvényt mutatják minden adatsor esetén.

gázzott – így tömörödött – vonal lefelé húzza a köztük lévő besugárzatlan területen is az anyagot. Így az anyag felülete itt görbe lesz. Mivel a besugárzott szomszédos vonalak távolsága állandó, a görbületnek lesz egy maximális értéke, ami a PDMS rugalmassági együtthatójától függ. Ennek a rugalmas deformációnak a következtében mechanikai feszültség alakul ki az anyagban. Amikor a tömörödésből származó erő egyenlővé válik a mechanikai feszültségből származó erővel, a polimer egyensúlyi állapotba kerül, ezért az anyag további zsugorodása nem nőhet tovább. Egy adott görbület esetén a besugárzó fluens növelésével a tömörödés mértéke aszimptotikus lesz (ld. 61. ábra). A görbék aszimptotái (tehát az elérhető legnagyobb tömörödés) a $15 \mu\text{m} / 30 \mu\text{m}$, a $25 \mu\text{m} / 50 \mu\text{m}$, és a $25 \mu\text{m} / 100 \mu\text{m}$ struktúrák esetén $y = a - bc^x$ aszimptota függvényekkel illesztve $1,376 \mu\text{m}$, $2,162 \mu\text{m}$, és $4,789 \mu\text{m}$ értékeknek adódnak. A viszonylag kis vonaltávolságok esetén (ami a mikromegmunkálásban gyakori) az összezugszorodás eléri a maximális értékét kb. $9,34 \times 10^{14}$ ion/cm² (azaz kb. 1500 nC/mm^2) fluensnél. 2 MeV energiájú protonokkal nagy fluenssel és nagy vonaltávolsággal a tömörödés mértéke elérheti a behatolási mélység $\sim 6\%$ -át. A PDMS egy másik előnye más polimerekhez (pl. PMMA) képest az, hogy a besugárzás hatására képződő illékony gázok el tudják hagyni a besugárzott térfogatot, így buborékok nem keletkeznek, a felület jó minőségű lesz.

A fázisváltozásra vonatkozó adatokat a fázisképekből nyertük, amelyeket a topográfiai képekkel együtt szimultán gyűjtöttünk. A fázisváltozást és a hozzá tartozó felületi topográfiát minden minta esetén összehasonlítottuk (különböző vonalszélesség és távolság, illetve különböző fluensek). Arra a következtetésre jutottunk, hogy a kis fluensek esetén a felületi topográfia nem követi a fázisváltozást, ez utóbbi viszont megfelel a besugárzott mintázatnak (ld. 62. ábra).

Ennek magyarázata, hogy a mechanikai feszültség (amit a tömörödés okoz) eltorzítja az eredeti mintázatot. A 62.(b) ábrán látható, hogy a fázisváltozás görbén lévő csúcsoknál töréspontok vannak a topográfiai görbén. Ez valószínűleg azt jelzi, hogy



62. ábra. (a) Az 50 nC/mm^2 fluenssel $25 \mu\text{m} / 50 \mu\text{m}$ (vonalszélesség/távolság) struktúrával besugárzott minta fázisképe. (b) A felületi topográfia és a fázisváltozás ugyanazon a mintán a megjelölt vonal mentén. Kis fluensek esetén a felületi topográfia nem követi a besugárzott mintázatot, azaz a fázisváltozási görbét. A minta a fázisváltozás görbén magasabb értékekhez tartozó helyeken egyenletes töltéeloszlással volt besugározva. (c) Az 500 nC/mm^2 fluenssel $15 \mu\text{m} / 30 \mu\text{m}$ (vonalszélesség/távolság) struktúrával besugárzott minta fázis képe. (d) A felületi topográfia és a fázisváltozás ugyanazon a mintán a megjelölt vonal mentén. A minta a fázisváltozás görbén magasabb értékekhez tartozó helyeken volt besugározva, ezeken a helyeken tömörödés történik.

repedések vannak az anyagban, amelyek nem láthatóak a szimultán felvett topográfiai képen, mert a lépések között kb. 200 nm távolság van. A repedések szélessége valószínűleg ennél sokkal kisebb. A 62.(a) ábrán a besugárzott és a besugárzatlan területek különböző fényessége arra utal, hogy a minta kémiai összetétele és/vagy merevsége megváltozott a besugárzás hatására. A besugárzott területeken jellemző nagyobb fázisváltozás a megnövekedett adhézióra, nedvesítő képességre [125] és/vagy merevségre [130] utal.

Nagyobb fluenseknél ($3,13 \times 10^{14} \text{ ion/cm}^2$ vagy 500 nC/mm^2 fölött) a felületi topográfia és a fázisváltozás a besugárzási mintázatot meglehetősen jól követi. A besugárzott területek jelentősen tömörödnek, de az aljuk nem sík. A besugárzott területek között a besugárzatlan területek szabályos görbületet mutatnak.

Azt a jelenséget, hogy a topográfia görbe nem követi pontosan a fázisváltozás görbét úgy magyarázhatjuk, hogy a besugárzás miatti tömörödés mechanikai feszültséget hoz létre. Besugárzás közben a besugárzott területen összezsugorodik az anyag, míg a besugárzatlan területen változatlan próbál maradni. A két fázis között

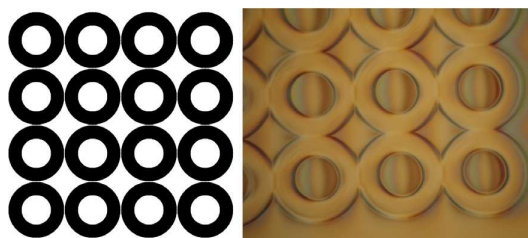
a topográfiai átmenet nem egy lépcsőfüggvény, hanem a PDMS gumyszerű természete miatt folytonos. Míg a fázisváltozás a besugárzott és besugárzatlan területek között kb. $3,7 \mu\text{m}$ széles sávban jelenik meg (ez a szélesség nyaláb méretétől függ), a felületi topográfia sokkal szélesebb átmenetet mutat. Ez azt jelenti, hogy ezzel a módszerrel éles oldalfalakat nem lehet létrehozni. A besugárzatlan területen megfigyelhető görbület már a besugárzott terület belsejében elkezdődik (ld. 62.(d) ábra), és ugyanez okozza a repedéseket a tömörödött terület szélein. A tömörödés által okozott felületi struktúra megjelenése és az a tény, hogy képes a kialakult mechanikai feszültséget elviselni azt jelenti, hogy a besugárzott és besugárzatlan polimer merevsége lényegesen különböző.

A PBW technikával megmutattuk, hogy lehetséges görbe szélű sekély struktúrákat létrehozni PDMS polimerben. A felület görbülete és a tömörödés mértéke a besugárzott ionfluenssel és a struktúrák egymástól való távolságával hangolható. A megfelelő besugárzási paraméterek megválasztásával kívánt görbületek tervezhetők.

Megmutattam, hogy besugárzás hatására keletkező tömörödés PDMS-ben sokkal jeletősebb ($\sim 2 \mu\text{m}$), mint PMMA-ban ($\sim 200 \text{nm}$) [D4].

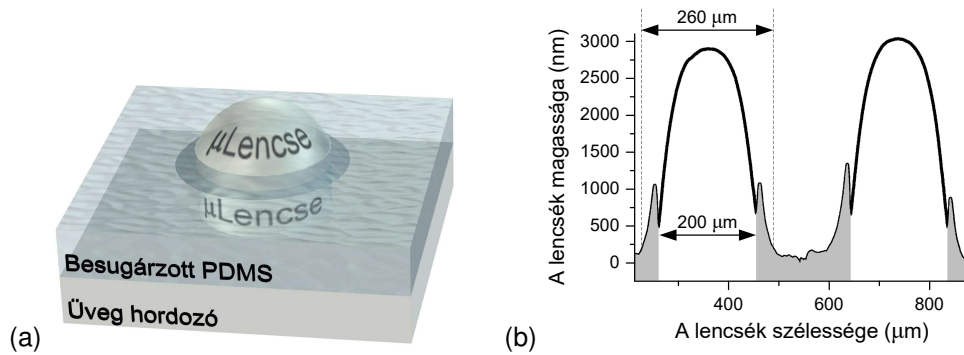
4.2.5. PDMS mikrolencsék készítése tömörödés segítségével

Az előzőleg megfigyelt tömörödési effektust kihasználva PDMS anyagban mikrolencséket terveztünk. Az ötlet lényege az volt, hogy egy gyűrű alakú besugárzással a felületet benyomva a gyűrű belsejében lévő anyagnak ki kell emelkednie, ahogyan ez a két párhuzamos vonal között is megvalósult. A PDMS tömörödése $\sim 1500 \text{nC}/\text{mm}^2$ fluensnél már eléri a maximumát [D4], ezért ezt az értéket választottuk besugárzó fluensnek. A nyaláb árama 500pA volt. A besugárzandó mintázatokat mátrix alakzatba rendeztük. A gyűrűk belső átmérője $15, 30, 60, 100$ és $200 \mu\text{m}$ volt (a $100 \mu\text{m}$ -es gyűrűket ábrázoló fényképet a 63. ábra mutatja).



63. ábra. A besugárzási mintázat és a mintákon készült differenciális interferencia kontraszt (DIC) technikával készült mikrofotó. A gyűrűk belső átmérője $100 \mu\text{m}$.

A besugárzást követően a mintákat különböző módszerekkel megvizsgáltuk. A kis átmérőjű lencsék esetében atomerő mikroszkópot (AFM, NT-MDT Ntegra) használtunk, ezzel a mikrostruktúrák 3D topográfias képét vettük fel. A nagyobb átmérőjű minták (100 és $200 \mu\text{m}$) esetén profilométert (AMBIOS XP-1) használtunk, mert az AFM által maximálisan pásztázható területhez viszonyítva ezek a lencsék túl



64. ábra. (a) A mikrolencse 3D illusztrációja. A gyűrűn belüli terület besugárzatlan. (b) A $200\ \mu\text{m}$ átmérőjű lencse keresztmetszeti képe (profilométerrel mérve). A szürkével jelölt terület a besugárzott részt jelenti, ahol megváltozott a törésmutató. A lencsék széleinél látható csúcsok nem a topográfiát jelentik, hanem műtermékek: a profilométeres méréseknél a besugárzott és besugárzatlan területek közötti különböző keménység miatt jelennek meg.

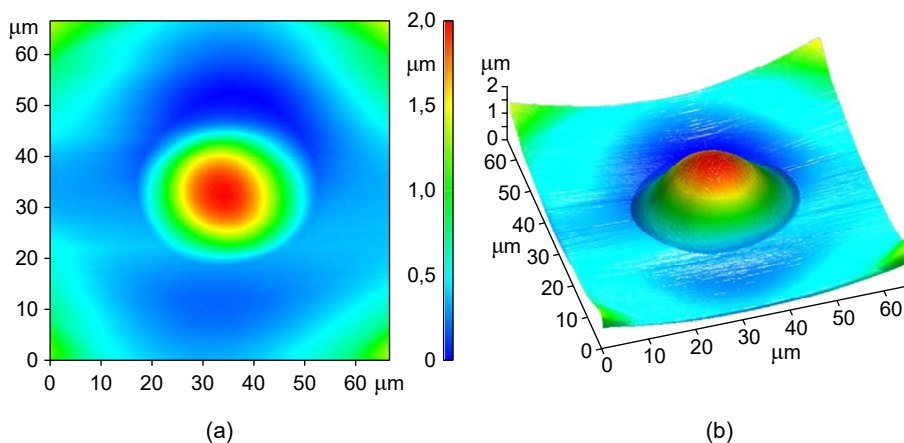
nagyok. Ezekkel a technikákkal lehetőségünk volt megvizsgálni a besugárzott területek tömörödését, a görbült felületű mikrostruktúrák magasságát és a mikrolencsék fókusztávolságát.

A besugárzott fluens a lencsék esetében azonos volt, de a lencsék átmérőjét változtattuk. Ezért a különböző átmérőjű lencsék szélein a gyűrűk különböző mértékben nyomódtak be, így alakítva ki különböző görbületeket, ezáltal különböző fókusztávolságú lencséket.

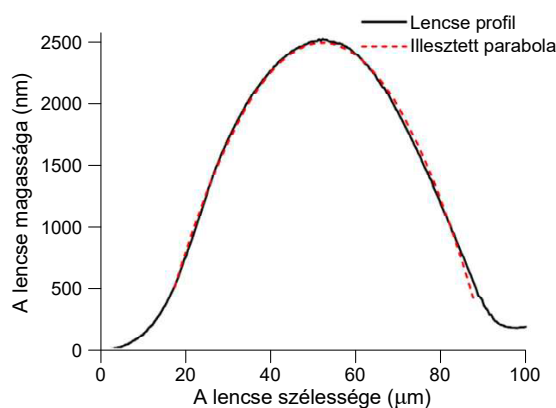
A mikrolencsék sematikus 3D képe és a felület keresztmetszeti profilja a 64. ábrán látható. A besugárzott területen a PDMS törésmutatója is megváltozott [127], így a lencsék körül gyűrű alakú nagyobb törésmutatójú területek keletkeztek (ld. a 64.(b) ábrán szürkével jelölve). A besugárzott és a besugárzatlan területek közötti átmenet nem lépcsőfüggvény, hanem folytonos a PDMS rugalmas természete miatt. Ezért a lencsék felülete már a besugárzott területen belül elkezd görbülni, nem pontosan a besugárzás szélénél.

A besugárzás hatására a PDMS keménysége is megváltozik. [D4], mert a polimer anyaga degradálódik és szilikát származékok keletkeznek (SiO_x) [131]. Ezért a mikrolencse felületének középső (besugárzatlan) részén más lesz a görbület, mint a lencsék kerületénél lévő besugárzott gyűrűnél. A különböző törésmutató és görbület különböző optikai úthosszakat eredményez, és sferikus aberráció típusú lencsehibákat okoz. Pl. a 64. ábrán látható $200\ \mu\text{m}$ átmérőjű lencse körül a gyűrű külső átmérője $260\ \mu\text{m}$, ennek a topográfiája is a lencse alakjához tartozik.

A profilométeres mérésekhez $0,1\ \text{mg}$ ($10^{-6}\ \text{N}$) túnyomást használtunk. Ez a túnyomás elég kicsi ahhoz, hogy lehetővé tegye a felület profiljának megmérését, de a rugalmas polimer felületén a fázis és a keménység különbségeket is mutatja. A különböző keménységek miatt különböző mértékű benyomódások keletkeztek, így ezek a benyomódások és a vizsgált lencsék felületi topográfiája eredményezte a profilokban megjelenő csúcsokat.



65. ábra. A $30\ \mu\text{m}$ átmérőjű mikrolencsék AFM képe. (a) Felülnézet, (b) 3D perspektívikus nézet.



66. ábra. A $60\ \mu\text{m}$ átmérőjű mikrolencsék profilja, az illesztett parabola függvényvel.

A kisebb átmérőjű lencsék esetén az AFM képek mutatják a geometriát. A 65. ábra a $30\ \mu\text{m}$ átmérőjű lencsét mutatja. A felülnézeti képeken látható, hogy a lencsék nem tökéletesen kör alakúak. Ebben az esetben a nagy tengely $31\ \mu\text{m}$, a kis tengely pedig $25\ \mu\text{m}$. Ennek az oka a nyáláb aszimmetrikus mérete, bár a nyáláb pásztázása körpálya mentén történt. Tökéletes kör alakú nyálábfolttal és kör alakú pásztázással ez az aszimmetria elkerülhető.

A geometria alaposabb vizsgálatából megállapítottuk, hogy a lencsék keresztmetszeti profilja nem szférikus, hanem parabolikus. A körön belüli besugárzatlan rész profilját az $Ax^2 + Bx + C$ parabolikus függvényvel illesztve a mért profil és az illesztett görbe jó egyezést mutatott (ld. a 66. ábra).

Az illesztett függvények paramétereiből a mikrolencsék fókusztávolságát is meghatároztuk. Mivel a lencsék nem tökéletesen szimmetrikusak az x és y síkban két különböző fókusztávolságot kaptunk, ami asztigmatikus lencsét jelent. A 6. táblázatban feltüntettem a hosszabb fókusztávolságokat és a lencsék magasságát.

A $200\ \mu\text{m}$ átmérőjű lencse profiljára nem volt illeszthető parabolikus függvény, mert a nagy átmérő miatt a lencse közepén egy $50\ \mu\text{m}$ átmérőjű lapos tető alakult ki.

6. táblázat. A különböző átmérőjű lencsék fókusztávolságai és magasságai.

A lencse átmérője (μm)	Fókusztávolság (μm)	A lencse magassága (μm)
15	18	0,9
30	24	1,9
60	150	2,5
100	180	2,6
200	–	2,7

Ezért ebben az esetben nem volt lehetséges az illesztés, így nem volt meghatározható a fókusztávolság.

A PDMS réteg vastagsága $85 \mu\text{m}$. A 15 és $30 \mu\text{m}$ átmérőjű lencsék fókusztávolsága a réteg vastagságánál kisebb, tehát a fókusztávolság a PDMS rétegben keletkezik. A 60 és $100 \mu\text{m}$ átmérőjű lencsék fókusztávolsága nagyobb, mint a réteg vastagsága, így a fókusztávolság a PDMS rétegen kívül van.

Mivel a tömörödés mértéke, így a lencsék görbülete a besugárzott fluensztől is függ, a lencsék fókusztávolsága tervezhető. A fluens csökkentésével hosszabb fókusztávolság érhető el, a kisebb átmérőjű lencsék esetén is.

PDMS-ben protonbesugárzás hatására keletkező tömörödést kihasználva konvex mikrolencsét hoztam létre [D5].

4.2.6. PDMS tömörödés és mikrolencsék készítése nitrogénbesugárzással

Az előző két munka folytatásaként a PDMS anyagot ezúttal nitrogén ionnyalábbal sugároztuk be, ettől azt vártuk, hogy a tömörödés a protonok által okozott effektushoz hasonló lesz, de annál érzékenyebb. Továbbá azt is terveztük, hogy mikrolencsék készítésével szintén az előzőhöz hasonló módon látványos demonstrációt mutassunk be [D6].

A besugárzásokat a Cseh Tudományos Akadémia Prága közelében, Řežben működő Magfizikai Intézetében a HVEE gyártmányú Tandetron gyorsítón üzemelő mikrooszondánál végeztük [A2].

A SRIM [19] szoftverrel kiszámítottam a $10,5 \text{ MeV}$ energiájú N^{4+} ionok behatolási mélységét a PDMS mintáink esetén. A [A2] munka során azt is meghatároztuk, hogy nitrogénnyalábbal ez az energia elég nagy ahhoz, hogy megfelelően nagy hozammal keletkezzen a $4+$ töltésállapot, de elég kicsi ahhoz, hogy ezt még tudjuk fókusztálni a kvadrupól lencsékkel. A $30 \mu\text{m}$ rétegvastagság bőven elég ahhoz, hogy a $13 \mu\text{m}$ behatolási mélységű nitrogénionok a PDMS rétegben megálljanak, tehát nem érhetik el a hordozót.

A besugárzott struktúrák egyik típusa különböző szélességű (15 és $25 \mu\text{m}$) és távolságú (30 , 50 és $100 \mu\text{m}$) párhuzamos vonalakkal állt. Annak érdekében, hogy különböző nagyságú tömörödést vizsgálhassunk, különböző fluenseket használtunk: $7,8 \times 10^{11} - 7,8 \times 10^{13} \text{ ions/cm}^2$ ($5-500 \text{ nC/mm}^2$). A tömörödés vizsgálatán túl ezek a mikrostruktúrák optikai rácsként is használhatók. A besugárzásokhoz használt áram $10-200 \text{ pA}$ között volt, melyet egy mini Faraday-csészével mértünk a céltárgy

helyén. Mivel a Tandetron által szolgáltatott nyaláb árama a tapasztalatok szerint nagyon stabil volt, ezért elég volt minden besugárzás előtt és után ellenőrizni az áramot a Faraday-csészében, és a tényleges besugárzásokat fix ideig végezni.

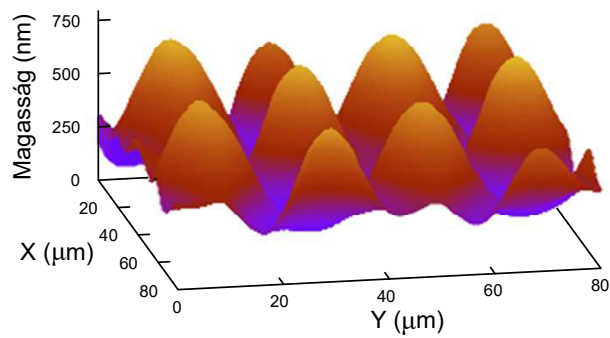
A nyalábot általában két dipólmágnessel néhány mm területen tetszőleges pálya mentén pásztázhatjuk, így lehetőség nyílik komplex alakú struktúrák létrehozására, pl. mikrolencse mátrix. A cseh mikroszondán lévő motoros mintamozgató programozható, ezért – javaslatom alapján – hosszú (cm nagyságrendű) egyenes vonalakat is készítettünk. Ekkor a mozgató tengelyére merőleges irányban még lehetőség van a mágneses pásztázásra is, így ilyen hibrid pásztázással hosszú optikai hullámvezetők előállítása is lehetséges [S9]. Egy másik munkában szén mikronyalábbal is készítettünk hullámvezetőket [S10].

A korábbiakban néhány MeV energiájú protonokkal (kis LET, Linear Energy Transfer) történő besugárzás hatására a jellemző kémiai változások: a H-típusú keresztkötések kialakulása (a PDMS lánc oldalcsoportjai között), és gázképződés a metil csoportok degradációja miatt. A nehézion besugárzás (nagy LET) hatására a metil csoportok degradációja és a hidroxil csoportok keletkezése mellett a fő –Si–O–Si– lánc is felhasad, emiatt Y-típusú keresztkötések is kialakulnak [132], [133]. Az elszökő gázmolekulák, és a különböző térhálósodási mechanizmusok a besugárzott terület tömörödését okozzák. A könnyű ionok általi besugárzás hatására a kémiai változásokon kívül az adhézió (nedvesítőképeség) és a polimer keménysége is megváltozik [134], [D4]. A szelektív mintázat szerinti besugárzások esetén a besugárzott és besugárzatlan területek közötti határvonalnál a felületen nem éles lépcsők, hanem folytonos görbült felületek keletkeznek, ami az anyag rugalmas természetének köszönhető. Ennek a jelenségnek gyakorlati haszna is van: így nyílik lehetőségünk további előhívási lépések nélküli konvex mikrolencsék készítésére [D5]. PDMS-ben más módszerekkel is próbálkoztak mikrolencse mátrixok készítésével [135], [136], [137], [138], [139], [140].

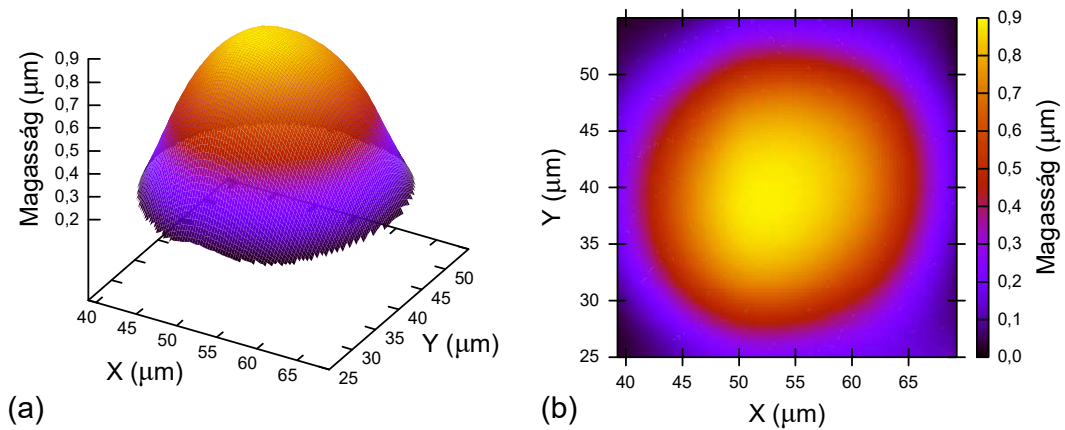
A protonbesugárzáshoz hasonlóan a tömörödés mértéke a besugárzó fluensstől függ, azzal monoton növekszik, majd egy bizonyos fluens után már telítésbe megy. Ezért most is asszimptotikus függvényvel illesztettük a mérési adatokat. Érthető módon [141] a besugárzott vonalak közötti nagyobb távolsággal nagyobb telítési érték kapható. Ahogy a besugárzott terület a tömörödés miatt benyomódik, a vonalak közötti besugárzatlan területen is lehúzza magával a felületet és mechanikai feszültség keletkezik. Esetünkben a 75 μm besugárzatlan terület (ez a 25/100 struktúra) már túl nagy, ennél kisebb vonaltávolságnál már eléri a tömörödés a maximális értékét.

A tömörödés méréséhez készített besugárzások után a fókuszált nitrogénnyalábbal mikrolencse mátrixokat is készítettünk (ld. 67. ábra). A vonalas struktúrák tömörödés értékei alapján a lencsék átmérőjét 15, 25 és 75 μm méretűre terveztük. A nagyobb átmérőjű lencsék esetén a besugárzott gyűrű vastagságát is növeltük. A besugárzott fluens értékét a tömörödés mérésekből kapott adatok alapján határoztuk meg. A kisebb átmérőjű lencsék esetén a tömörödés telítési értéke alacsonyabb fluensnél már bekövetkezik. Az egyik 25 μm átmérőjű lencse perpektíva és felülnézeti képét pedig a 68. ábra mutatja.

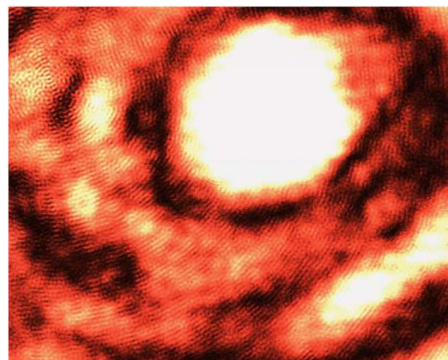
A 25 μm átmérőjű lencsék fókusztávolsága 100 és 1400 μm között, a 15 μm átmérőjű lencsék fókusztávolsága pedig 75 és 450 μm között változtatható.



67. ábra. A PDMS polimerben elkészített mikrolencse mátrix AFM képe.



68. ábra. A $25\ \mu\text{m}$ átmérőjű, $3,74 \times 10^{12}\ \text{ion}/\text{cm}^2$ ($24\ \text{nC}/\text{mm}^2$) fluenssel besugárzott mikrolencse AFM képe. (a) 3D perspektíva nézet. (Megjegyzés: a magasság skála sokkal kisebb, mint a laterális skála.) (b) Felülnézet. A mikrolencse jó közelítéssel forgásszimmetrikus, tehát asztigmia hibától mentes.



69. ábra. A $25\ \mu\text{m}$ átmérőjű, $2,4 \times 10^{13}$ ($150\ \text{nC}/\text{mm}^2$) fluenssel besugárzott mikrolencse fókuszáló hatásának fényképe.

A 75 μm átmérőjű lencsék fókusztávolsága nem határozható meg, mert a lencsék közepén lapos sík tető van.

Egy HeNe lézerrel és egy CCD kamerával teszteltük a mikrolencse fókusztávolságait. A 69. ábra a 25 μm átmérőjű, $2,4 \times 10^{13}$ ion/cm² (150 nC/mm²) fluenssel besugárzott lencse működését mutatja.

Kijelenthető, hogy nagy energiájú fókusztávolságú nehézion-mikronyalábbal PDMS anyagból sikerült közel tökéletesen szférikus mikrolencsét készíteni. A lencsék fókusztávolsága – bizonyos tartományban – tervezhető az alkalmazott fluens és lencse átmérő megfelelő megválasztásával.

Meghatároztam a nitrogén besugárzás hatására PDMS-ben keletkező tömörödés mértékét, és ezen az elven a felületen működő optikai eszközöket (diffrakciós rácsokat, konvex mikrolencsét) hoztam létre [D6].

4.3. Mikrofluidikai alkalmazások

4.3.1. Szilícium mikroturbina

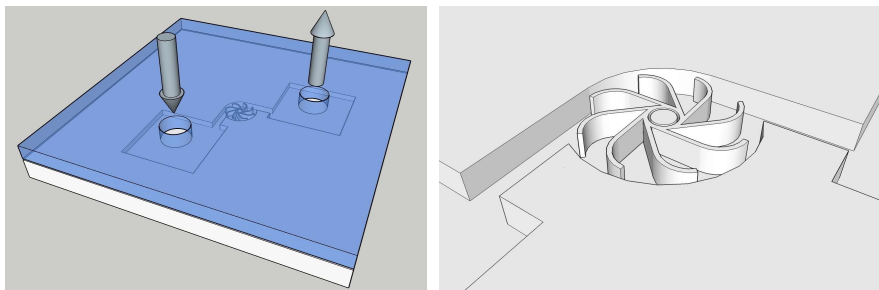
Integrált mikrofluidikai elemek fontos alkatrészei a lab-on-a-chip eszközöknek [142]. A legegyszerűbb ilyen rendszerek néhány passzív elemet tartalmaznak (pl. keverők [143]), de hasonló módon összetettebb eszközök is készíthetők (pl. betöltő, pumpáló rendszerek [144]). Az ilyen mikroelektromechanikai rendszerek (microelectromechanical systems, MEMS) néhány alapvető összetevőből épülnek fel: nyitott vagy eltemetett csatornák, folyadék keverők, stb. Fejlettebb eszközök mozgó alkatrészeket is tartalmazhatnak.

Ilyen lab-on-a-chip MEMS eszközök előállítására többféle mikromegmunkálási lehetőség kínálkozik: pl. forró dombornyomás (hot embossing), nyomásos öntés (pressure moulding), lézer abláció, LIGA. A leggyakrabban használt rezisztanyagok: SU-8, PMMA, PDMS, Kapton, polikarbonát [145], [146]. Komplex funkciókat ellátni képes eszközöket elsősorban szilíciumból, vagy a szilíciumot más anyagokkal kombinálva készítik [147].

A legalaposabban kidolgozott eszközök az inkjet nyomtatófejek [148], a biokémiai célú mátrix típusú injektáló rendszerek [149], és a membrán típusú mikroszivattyúk [144], amelyek tipikusan piezoelektromos vagy pneumatikus elven működtethetők.

Annak ellenére, hogy a laterális szilícium-membránok előállítását már néhány évtizede kidolgozták, a komplex eszközök készítése még mindig nagy kihívást jelent. Alternatív megoldási lehetőségek a tömbi szilícium lúgos marása vagy a felületi mikromegmunkálási módszer, melynek során a működtetett membránt polikristályos szilíciumból vagy fémből készítik [144].

Ezen módszerek egyike sem teszi lehetővé nagy oldalarányú, függőlegesen pozícionált struktúrák készítését egy süllyesztett csatornában. A legígéretesebb technika a mély reaktív ionmarás (Deep Reactive Ion Etching, DRIE), melyet széles körben alkalmaznak giroszkópok, gyorsulásmérők, vagy erőszenzorok készítésére [150], [151]. Bár a DRIE módszer a MEMS technológia integrális részévé vált, a módszer jellemzői miatt a DRIE procedúra nem alkalmas bizonyos típusú szilíciumstruktúrák



70. ábra. A mikroturbina szilícium chip szerkezete. A két téglalap alakú tartály belépő és kilépő tározóként működik, amelyek a fedélben kialakított cső csomkokkal vannak összekötve. A chip mérete $6 \times 6 \text{ mm}^2$. A kinagyított rajzon a tengelyre illesztett rotor látható.

elkészítésére. Nagy oldalarányú struktúrák készíthetők így, de csak egymásra merőlegesen lehet a részegységeket elhelyezni, nincs lehetőség a szögek megváltoztatására. Továbbá olyan Si mikrostruktúrák, amelyek különböző mélységű üregeket tartalmaznak a DRIE módszerrel nem vagy csak nagyon korlátozott módon hozhatók létre többlépcsős feldolgozási sorozattal.

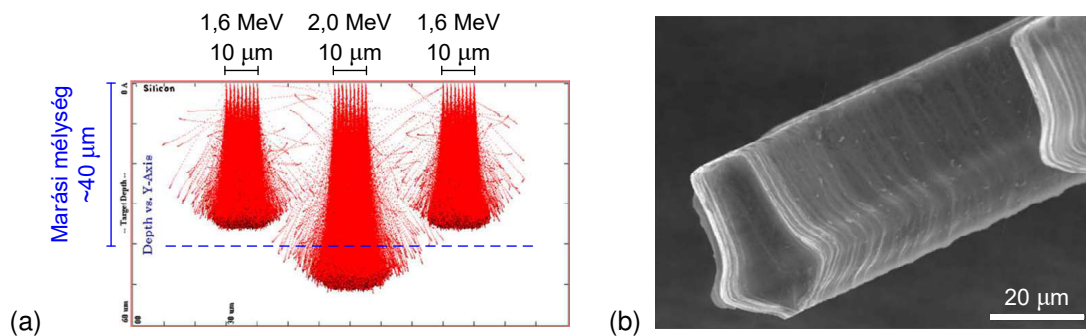
Egy új megoldási lehetőség az elmúlt néhány évben elérhetővé vált PBW [5] a porózus szilícium feldolgozással kombinálva [152], melyek együttesen nagy oldalarányú 3D Si mikrostruktúrák létrehozását teszik lehetővé [76], [77], [78]. Egy korábbi munkánkban már megmutattuk, hogy nagy elmozdulásra képes vékony szilíciummembránok készíthetők ezzel a kombinált módszerrel [S2], ezt követően pedig egy forgásra képes mikroturbinát készítettünk (a tervezett eszköz 3D rajzát a 70. ábra mutatja).

Mivel az ionok energiája meghatározza a behatolási mélységet, különböző pályák mentén pásztázva a mikronyalábot, a szilíciumban különböző alakú és mélységű mikrostruktúrák készíthetők. A porózus szilícium marása izotróp folyamat, így a kisebb energiával besugárzott, ezért kisebb mélységű struktúrák alámarásával leválaszthatók a tömbi szilícium hordozóról. A nagyobb energiájú besugárzás mélységéig nem megyünk el a marási fonttal, így ezek a struktúrák maradnak a tömbi anyaghoz rögzített helyzetben.

A p-típusú, $10\text{--}15 \text{ }\Omega\text{cm}$, $\langle 100 \rangle$ orientációjú szilícium kristályt bevontuk egy dupla védőréteggel ($0,4 \text{ }\mu\text{m}$ vastag szilíciumban gazdag szilícium-nitrid és $0,5 \text{ }\mu\text{m}$ vastag nem-szennyezett polikristályos szilícium), ennek a feladata a porózus szilíciummá átalakulás megakadályozása a turbinaházon kívül. A következő lépésben a SiN/polikristályos réteget nedves és plazma marással szelektíven eltávolítottuk a turbina és az összekötő csatornák feletti területről. Az elektrokémiai marás után a mikrostruktúra elkészítése a porózus szilícium 1% KOH marószerben történő kioldásával fejeződött be.

A besugárzás vezérlését az IonScan [96] programcsomaggal végeztük, mert ez lehetővé teszi a pálya tetszőleges definiálását. Először mindig a struktúrák körvonalai mentén vezettük végig a nyalábot, így a széleken sima oldalfalak készíthetők.

A nagyobb energiával (2 MeV) a turbinaházat és a tengelyt sugároztuk be. Ezzel



71. ábra. (a) SRIM szimuláció a kétféle protonenergiára $10\ \mu\text{m}$ széles protonnyaláb esetén. Középen a tengely, a két oldalon a turbinalapát tengelyhez közeli részének függőleges metszete. Az elektrokémiai marás mélysége $\sim 40\ \mu\text{m}$, így a rotor alámaródik, de a tengely a hordozón rögzítve marad. (b) A turbinalapát profilja (SEM fénykép) a porózus szilícium eltávolítása után: jól látható az oldalirányú kiszélesedés, amit a szimuláció is mutat.

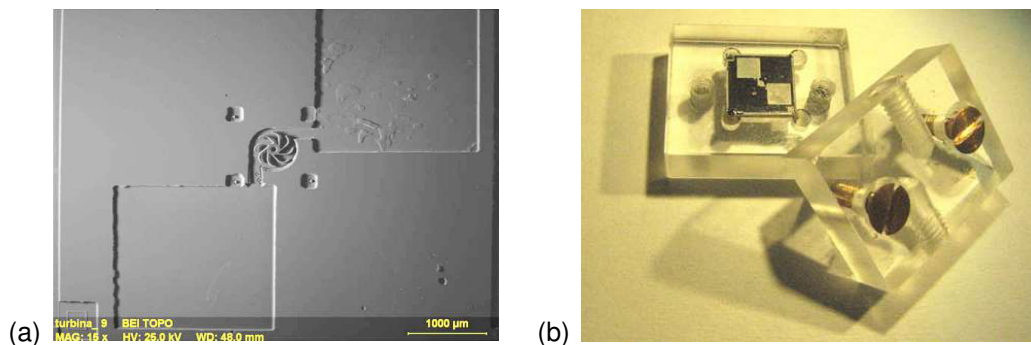
az energiával a protonok $47,7 \pm 2\ \mu\text{m}$ mélyséig jutnak el, és $2,6\ \mu\text{m}$ laterális kiszélesedést szenvednek. Ezt követően az energiát csökkentettük $1,6\ \text{MeV}$ -re, és ezzel sugároztuk be a turbina rotorját. A protonok behatolási mélysége ekkor $33,5 \pm 2\ \mu\text{m}$, a laterális kiszélesedés $1,9\ \mu\text{m}$. A besugárzásokhoz szükséges energiát a SRIM programmal történő szimuláció alapján határoztuk meg [19], (ld. 71. ábra). A besugárzott fluenst 3×10^{15} proton/ cm^2 nagyságúnak választottuk, mert így az elektrokémiai marás során teljesen megszűnik az áram, ami blokkolja a szilícium porózussá átalakulását a teljes besugárzott mélységben [78], [S2]. A protonnyaláb mérete $1\ \mu\text{m}$ volt, a mintapozicionálás visszaállási pontossága a kétféle energiás besugárzások között $\pm 1,5\ \mu\text{m}$.

A porózus szilícium kialakításához végrehajtott elektrokémiai marás $10\ \text{mA}/\text{cm}^2$ áramsűrűséggel történt $\text{HF}(49\%):\text{EtOH} = 7:3$ elektrolitban. A marás mélysége $\sim 40\ \mu\text{m}$ volt, ami a kétféle besugárzási energia által meghatározott behatolási mélységek között kb. félúton van. Így a rotor a hátlapról leválasztható, míg a ház és a tengely rögzített marad.

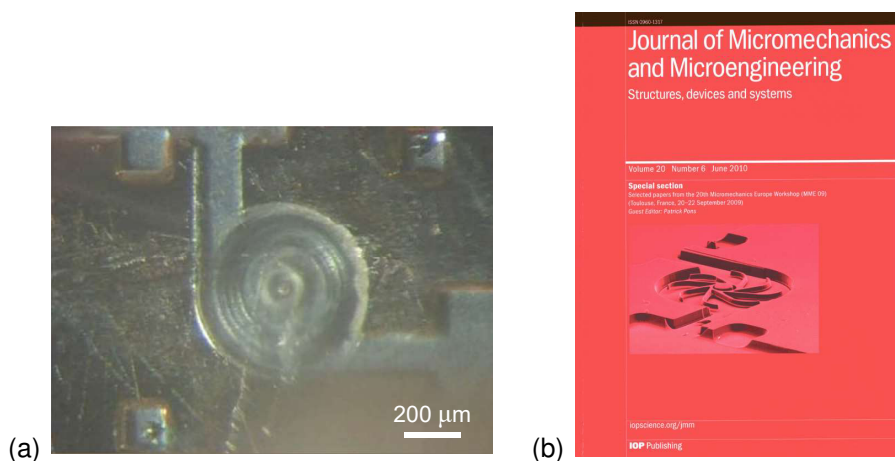
Végül a turbinát beépítettük egy megfelelően kialakított PMMA tartóba, amit egy PMMA fedéllel zártunk le (ld. 72.(b) ábra). A fedélen ejtett két furaton keresztül lehetséges folyadék (vagy levegő) áramoltatása a turbinán keresztül.

A PMMA tartóba betokozott eszköz működéséről videofelvételt készítettünk (ld. 73.(a) ábra). A turbinalapát forgási sebességét csak becsülni tudtuk ($>1000\ \text{rpm}$), mivel a leggyorsabb fps értékű videofelvételen sem volt azonosíthatóak a forgó lapát karjai. Az egyszerű videofelvételen túl további lehetőség lézerrel történő megvilágítás, és a visszaszórt fény periodikus intenzitás változásának mérése alapján meghatározni a fordulatszámot. Mivel a projektnek ez a része már nem az én munkám volt, itt csak annyit említek ebből, hogy az MFA-s kollégák és Műegyetemi hallgatóik erre a célra egy DVD író-olvasófejet használtak, ami egy nagyszerű ötlet, mivel egy könnyen elérhető eszközben megtalálható minden szükséges funkció.

Összefoglalásképpen elmondható, hogy egy működőképes 3D mikroturbinát ké-



72. ábra. (a) A kész mikroturbina chip SEM fényképe. (b) A chip tokozása. Az alsó tartóban egy mélyedésbe süllyesztve helyezkedik el a szilícium chip. A fedél két csavarral rögzíthető rá. A fedélben lévő furatok biztosítják a be- és kivezetést. A két rész közötti tömítést egy vékony ($30\ \mu\text{m}$) tömítés biztosítja.



73. ábra. (a) A kész mikroturbina chip forgó rotorral (a forgásról készült videó a <http://iba.atomki.hu/video/> címen látható). (b) A mikroturbina SEM fényképe a *Journal of Micromechanics and Microengineering (JMM)* folyóirat címlapján.

szítettünk szilíciumból, amelynek a nagy oldalarányú falait, a tengelyét, és a lapátját is PBW és az ezt követő szelektív porózus szilícium marással készítettük el. A protonokkal történő besugárzás kismértékű roncsolást okoz a kristályban, aminek következtében megnő az ellenállás. Ez a nagyobb ellenállás korlátozza, vagy akár teljesen megakadályozza az áram áthaladását, ami az elektrokémiai maráshoz szükséges. A folyamat különlegessége, hogy a besugárzáshoz kétféle protonenergiát használtunk, ezáltal kétféle mélységű struktúrát állítottunk elő. A nagyobb energiát használtuk a ház és a tengely készítésére, míg a turbinalapátot kisebb energiával készítve ennek a mélysége kisebb lett, így el tud fordulni a tengelyen. A felhasznált energiákat az ionok behatolási mélységét szimuláló SRIM [19] számolások alapján határoztuk meg. Az elektrokémiai marást addig végeztük, amíg a mozgó alkatrész alámartunk, de az állórész mélysége előtt megálltunk. Így a porózus szilícium kioldása után a turbinalapát szabaddá vált.

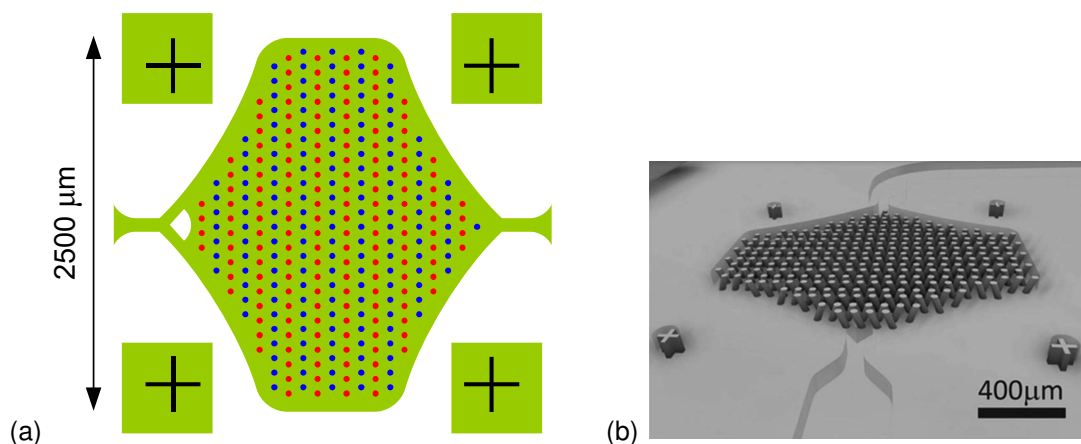
Ez az eredményünk felkerült a Journal of Micromechanics and Microengineering (JMM) folyóirat címlapjára is [S3] (ld. 73.(b) ábra).

Megterveztünk és elkészítettünk egy mikroturbinát, ami a világon az első mozgó alkatrészt tartalmazó – PBW és porózus szilícium marással kombinált módon készült – szilícium eszköz volt [D7].

4.3.2. Döntött oszlopokon alapuló mikrofluidikai eszköz cirkuláló ráksejtek kiszűrésére

Speciális mikrofluidikai eszközöket gyakran alkalmaznak számos területen a minta-preparálásnál és a folyadékfeldolgozásnál is, pl. sejtmanipuláció, sejtválogatás, célzott sejtcspadázás különböző testnedvekből vagy más biológiai mintákból [153], [154]. A sejtek válogatása és csapdázása alapvető fontosságú a rákkutatásban, különösen a ritka sejteket célzóan, mint a cirkuláló ráksejtek (circulating tumor cells, CTCs) [155], [156], [157]. A mikrofluidikai sejtbefogó chip (microfluidic cell capture devices, MCCDs) – amelyek különleges 3D geometriával rendelkeznek – nagyon ígéretes jelöltek a ritka sejtek csapdázására és dúsítására. A kis méreteiknek köszönhetően nagy felület/térfogat arány jellemző ezen eszközökre, ezáltal különlegesek a fizikai tulajdonságaik, amelyek nagyon különbözőek a makroszkopikus világra jellemzőktől [158].

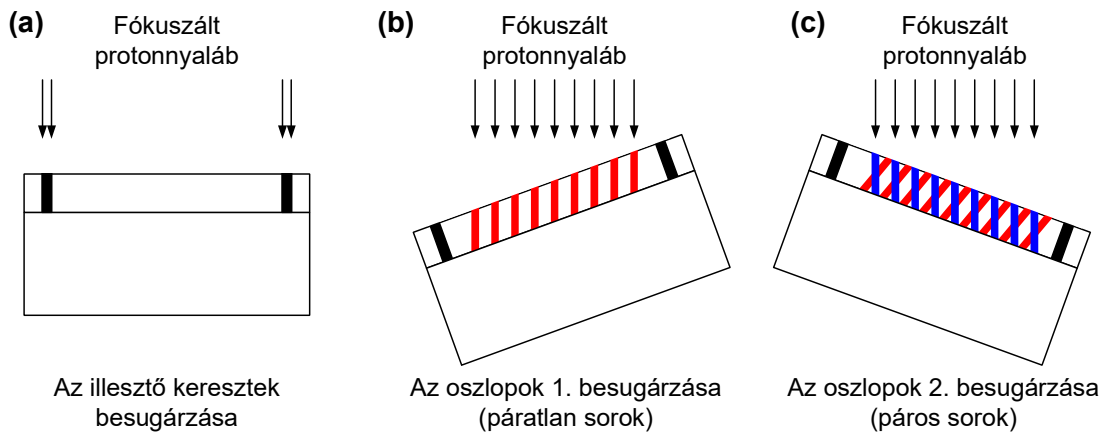
Az általunk tervezett MCCD két részből áll, amelyeket két különböző üveg hátlapra felvitt PDMS rétegben készítettünk el (ld. 74–77. ábrák), majd ezeket egybeintegráltunk.



74. ábra. A mikrofluidikai sejtbefogó chip terve. (a) A chip alsó része PBW technikával készült. A pirossal jelölt körök besugárzása $+20^\circ$, míg a kézzel jelölt körök besugárzása -20° döntési szög alatt történt. A sarkokban elhelyezett illesztőjeleket (fekete keresztek) döntés nélkül sugároztuk be. A zölddel jelölt terület a felső részben lett kialakítva. A belépő oldalon elhelyezett köröcikk szerepe a folyadék oldalirányú egyenletes szétterítése, ennek hiányában a folyadék nagy része az eszköz középső részéhez közel haladna. (b) A tervezett oszlopmátrix 3D szimulációs rajza.

A PDMS nagyon előnyös a speciális bioaffinitású bevonatok számára, amivel a mikrofluidikai eszköz teljes belső felületét bevontuk, mert ez köti meg szelektíven a kiválasztott sejteket. Az oszlop mátrixot és a négy illesztőkeresztet PBW technikával állítottuk elő, ez került a chip alsó részére. A felső rész a mikrofluidikai rendszer transzport részét tartalmazza (az oszlopokat tartalmazó terület kupakját, a belépő és kilépő csatornákat és tartályokat, valamint az alsó részen megtalálható illesztőkereszteket fogadó üregeket).

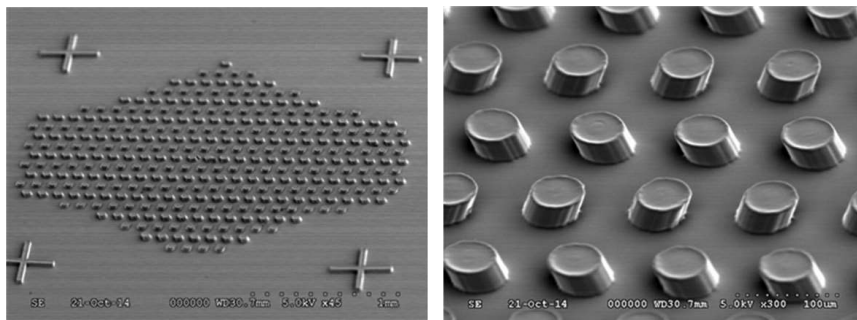
A PBW besugárzásokat folyékony PDMS-ben végeztük [S4]. A térhálósodást a protonnyaláb által végzett besugárzás okozza. A kialakított mikroszkopikus oszlopok sorait – korábbi ötleteim alapján [S11] – úgy sugároztuk be, hogy a nyaláb tengelyéhez képest elforgattuk a mintát, így döntött oszlopokat kaptunk. Az egyik sor (páratlan sorok) oszlopait $+20^\circ$, a másik sor (páros sorok) oszlopait -20° szögbe állítottuk a felület normálisához viszonyítva. A pásztázás vezérlését rész-ábrákra bontottuk, majd ezeket a 75. ábrán látható módon három különböző döntési szögben sugároztuk be.



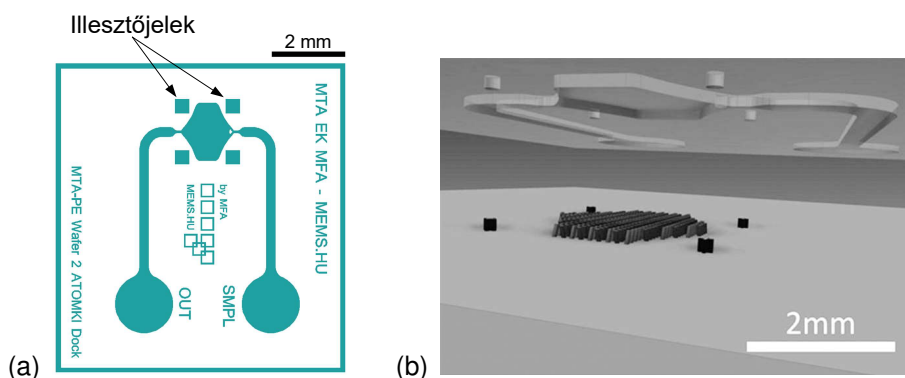
75. ábra. A háromféle irányú besugárzás sematikus megjelenítése (oldalnézet). (a) Az illesztőkeresztek besugárzása a felületre merőleges beesésű nyalábbal (fekete). (b) A páratlan sorok $+20^\circ$ döntési szögben besugározva (piros). (c) A páros sorok -20° döntési szögben besugározva (kék).

Az oszlopok döntésének legnagyobb előnye a megnövelt funkcionális felület, ami növeli a kölcsönhatás határfokát és javítja a folyadék dinamikai viselkedését a sejt-befogó kamrában. A mikrofluidikai eszköz központi részében elhelyezkedő hengeres oszlopok átmérője $50 \mu\text{m}$, a magassága pedig $20 \mu\text{m}$. Az oszlopok átmérője a nyaláb pásztázásával, a magasság pedig a folyékony PDMS réteg vastagságával hangolható. Ezeket a méreteket az előzetesen elvégzett numerikus áramlástanai modell (computational fluid dynamics, CFD) számítások eredményei alapján határoztuk meg.

Az MCCD alsó részén lévő mikrostruktúrák SEM fényképeit a 76. ábra mutatja. Az illesztés sematikus 3D rajza a 77. ábrán látható. A felső rész alakja változatlan volt, független az oszlopok pontos tervétől (egyedi oszlopok mérete, alakja, döntési szöge, köztük lévő távolság, stb.), így lehetővé téve különböző oszlop-elrendezések azonos peremfeltételek melletti tesztelését. Az injektáló rendszer nem tartalmaz dön-



76. ábra. A duplán döntött mikrooszlopok elektronmikroszkópos fényképei. A jobb oldalon az oszlopok képe nagyobb nagyításban látható.



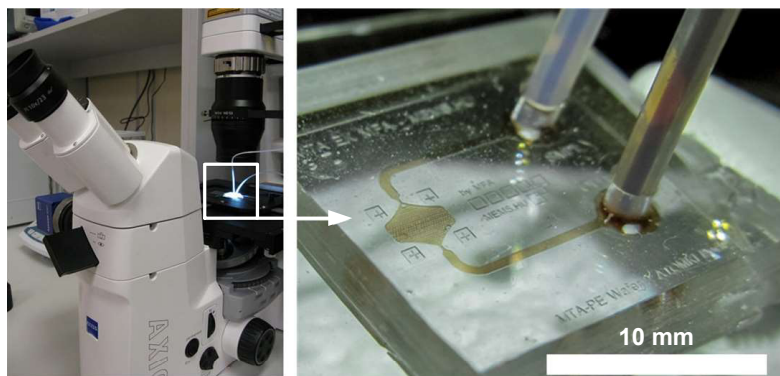
77. ábra. A mikrofluidikai chip kupakjának felépítése. (a) Felülnézet. A sötéttel jelölt terület (bemeneti és kimeneti tartályok, az összekötő csatornák, és az illesztőjelek) UV fényel levilágítva. Az exponált SU-8 előhívása után öntőformaként szolgált a PDMS replikához. (b) Az illesztés terve.

tött alkatrészt és viszonylag nagy területen helyezkedik el, ezért ezt UV litográfiával készítettük el.

A PBW módszerrel létrehozott mikrooszlop-rendszert lágylitográfiával integráltuk a mikrofluidikai rendszerbe. Az alsó és felső rész PDMS felületeit oxigénplazma-kezelés után ragasztottuk egymáshoz (bonding) az illesztőjelek felhasználásával. Az így elkészült eszköz tesztelése közben a 78. ábrán látható.

Az MCCD-ben lezajló hidrodinamikai folyamatokra vonatkozó modellszámítások eredményeinek validálásához élesztősejtek mozgását monitoroztuk a rendszerben. A sóoldattal pufferelt foszfátoldatban (buffered phosphate solution, PBS) lévő élesztősejtek méreteloszlása hasonló volt a humán vörösvértestek méreteloszlásához. A megfigyeléshez inverz mikroszkópot használtunk (Zeiss AxioScope) világos és sötét kontraszt üzemmódban. A folyadék áramlási sebessége (25 mL/h) a modellszámítások eredményének megfelelő volt. A sejtek koncentrációja $7 \times 10^{10} \text{ L}^{-1}$, így a mérések során nem tömődött el a szűrő.

A sejtek mozgásának trajektóriáit mikroszkóppal követtük. A sejtek dominánsan elmozdultak az oszlopok döntési iránya felé. Ezt a determinisztikus laterális elmozdulást a lokális aszimmetrikus hidrodinamikai paraméterek okozzák a dön-



78. ábra. Az elkészült MCCD. Az ábra a validációs kísérletet mutatja, amikor a mikrofluidikai eszköz élesztősejteket tartalmazó színezett biológiai tesztoldattal volt megtöltve.

tött oszlopok körül. Az élesztősejtek mozgása a modellszámításoknak megfelelően alakult, így a megtervezett és elkészített mikrofluidikai eszközt késznek fogadtuk el.

A munka folytatása a szimulált trajektóriák optikai validációja és a sejt befogási határfok kísérleti kiértékelése, ezeket a cikk folytatásában (Part 2) publikáltuk [S12].

Ezt a munkát a Pannon Egyetem Lendület kutatócsoportjával és az MFA-val egy általam vezetett OTKA projekt keretében együttműködésben végeztük. A lezárult OTKA projekt zárójelentésének értékelése jól megfelelt, a Lendület projekt értékelése kiváló.

Egy olyan új mikrofluidikai eszközt terveztünk és valósítottunk meg, amely döntött oszlopok segítségével a cirkuláló ráksejtek kiszűrésére alkalmas. A hagyományos litográfiai eljárásokkal megvalósíthatatlan döntött oszlopok megnövelték a funkcionális felületet, így a kialakuló különleges áramlástanai viselkedés elősegíti a funkcionális felület és a folyadék kölcsönhatását [D8].

Az eredmények hasznosítása

A tudományos munka folytatásához elengedhetetlenül szükséges az infrastruktúra fejlesztése. Ez annak ellenére igaz, hogy általában nem jár azonnali tudományos eredménnyel, mégis hosszú távon meghozza gyümölcsét.⁴

Az Atomki pásztázó ionmikroszondája az elmúlt évtizedekben számos tudományterületen került hasznosításra. A PIXE alkalmazások során mindig a kétdetektoros módszert használtuk.

Ezek közül néhány fontosabb példát említve, az EU FP5 Nanoderm projekt keretében titánnanoszemcsék felszívódását vizsgáltuk emberi és állati bőrök felületén. A vizsgálat eredménye megnyugtató volt: a nanorészecskék nem jutnak el olyan mély rétegekbe, ahol már toxikus hatásuk lenne a szervezetre [163].

Az EU FP7 Charisma projekt, majd ennek folytatásaként a H2020 IPERION-CH projekt keretében a kulturális örökség megőrzése témában hozzáférést (Transnational Access) biztosítunk különböző európai országokból érkező régészek számára archeometriai vizsgálataikhoz. Itt nagyon fontos szerepet játszik az alkalmazott ionnyaláb-analitikai módszerek roncsolásmentessége. Ennek érdekében a mikronyalábot nemcsak vákuumban, hanem levegőre kihozva is alkalmazzuk. Ezekből az eredményekből is számos publikáció született, pl. [164], [165].

Csoportunkban több évtizedre nyúlik vissza légköri aeroszolok vizsgálata, kezdetben makro-PIXE, később mikro-PIXE módszerrel is (egyedi szemcse analízis), majd időfeloldással végzett mintavétel, és munkahelyi beltéri aeroszolok vizsgálata is történt [166]. Ebben a témában jelenleg is több doktorandusz dolgozik együtt.

A Tandetron gyorsító használatával készült első tudományos eredményt – a nukleáris asztrofizikai szempontból fontos $^{17}\text{O}(p,\gamma)^{18}\text{F}$ magreakció hatáskeresztmetszeteinek méréséről – a Phys. Rev. C folyóiratban közzétettük [S6].

⁴ Ilyen fejlesztések nélkül nem lett volna lehetséges a későbbi generációk számára részecskegyorsítókra alapozott kísérleti munka. A külföldi gyorsítók melletti mérésekre is azért tudnak csatlakozni – sőt gyakran ott irányító szerepet is vállalni – a hazai kollégák, mert itthon van lehetőségük arra, hogy megszerezzék az ehhez szükséges tapasztalatot. Az Atomki alapításától kezdve Szalay Sándor professzor is fontosnak látta ezt, ezért kezdtek bele először a neutrongenerátorok fejlesztésébe, később a kaszkádgyorsító, majd a 60-as évek végén Koltay Ede vezetésével a Van de Graaff-generátorok építésébe, ez utóbbiak még ma is jelentős kihasználtsággal működnek. Ugyanilyen hosszú távú felhasználást várhatunk az új Tandetron gyorsító esetén is.

Összefoglalás és kitekintés

Jelen dolgozat alapját az elmúlt két évtizedben végzett kutatómunkám képezi. Ezt megelőzően, a PhD-munkám során a pásztázó ionmikroszkóp telepítésével és tudományos alkalmazásaival foglalkoztam. Az így létrehozott infrastruktúra későbbi felhasználásával a következő években számos további fejlesztést és érdekes témájú kutatást folytattam, melyek eredményei már ezen dolgozat téziseinek alapját jelentik. Közel négy évet töltöttem posztdoktori ösztöndíjasként külföldön, és az ott szerzett tapasztalatok alapján reális esély mutatkozott arra, hogy itthon is megvalósuljon a mikroszkóp továbbfejlesztéseként a nanoszkóp. Ehhez egy új gyorsítóra is szükség volt. A Tandetron Laboratórium – MTA infrastruktúra- és GINOP-pályázatok támogatásával – ma már egy világszínvonalú kutatói környezetet jelent. Ez lehetőséget biztosít a kutatás hazai folytatására, a témaválaszték bővítésére, és a fiatalok vonzására is.

Az IBA és PBW terén külföldön és itthon elért eredményeim a tézispontokban találhatóak. A munka kísérleti jellegéből adódóan minden esetben csoportok munkájából születtek az eredmények. A tézispontok alapját képező munkákban meghatározó szerepem volt.

Az első fejezetben az *infrastruktúra fejlesztések* során külföldön és itthon elért eredményeimet mutattam be.

A Szingapúri Egyetemen működő kutatócsoport alapítója, Frank Watt meghívására elvállaltam, hogy részt veszek a nanoszkóp kifejlesztésében. Az általam kidolgozott finomhangolási eljárás segítségével a kvadrupól mágneses lencsét olyan pontosan sikerült beállítani, ami világrekord nyalábméretet eredményezett. Ezenkívül a nanonyalábbal számos alkalmazást is végeztünk, pl. nyalábméret-mérő standardot készítettünk. Jellemző, hogy abban a csoportban 18 fiatal dolgozott együtt, és ők 15 különböző nemzetiséget képviseltek.

A mikro- és nanoszkóp-építési tapasztalataimat ismerő cseh kollégák felkérésére irányító szerepet vállaltam Řež-ben a Cseh Tudományos Akadémia Magfizikai Intézetében az új Tandetron gyorsítóra telepített pásztázó ionmikroszkóp kvadrupól triplétt lencséinek finomhangolásában, ezzel elérve a specifikált 1 μm -es nyalábméretet. Továbbá a lehetőségek ismeretében felmerült ötletem alapján nemcsak protonokat, hanem szén-, oxigén- és szilíciumionokat is mikronos nyalábméretre fókuszáltunk. Ezt a lehetőséget kihasználva később – bilaterális T_ET együttműködések és egyéni meghívások keretében – nehézion mikromegmunkálással mikrooptikai eszközöket készítettünk, és azok működési paramétereit elemeztük.

A külföldi tapasztalatokat felhasználva megterveztem és megépítettem az Atomki új nanoszkópját, amely új lehetőségeket nyit meg a jelenlegi tematika mellett. Ehhez szükség volt az új 2 MV Medium-Current Plus Tandetron részecskegyorsítóra, melynek kiváló paramétereik alkalmassá teszik a nanoszkóp és más felhasználók hosszú távon történő kiszolgálására.

A második fejezetben az *ionnyaláb-analitika* terén végzett fejlesztésekkel és alkalmazásokkal foglalkoztam.

Új mérési módszert dolgoztam ki a mikro-PIXE módszerhez, amellyel a vizsgálandó minták teljes analitikai jellemzése megvalósítható egyetlen besugárzással a széntől az uránig terjedő rendszám tartományban.

A mikroszonda vákuumkamrájának megfelelően megtervezett és megépített kiterjesztésével $15\ \mu\text{m} \times 17\ \mu\text{m}$ méretű pásztázható deuteronnyalábot hoztam létre $\sim 1\ \text{nA}$ árammal, ezzel a világon elsőként megvalósítva a mikro-DIGE analitikai módszert.

Megmutattam, hogy a nyaláb méretének mérésére és a rutinfókuszálás végrehajtására a kidolgozott standard teszchip kiválóan alkalmas. Mátrix effektusokkal értelmeztem a szilícium elem térképeken látható hamis inhomogenitásokat. A mérőelektronika holtidejének helyfüggésével magyaráztam a homogén nikkellréteg vastagságának látszólagos gradiensét.

Alumínium-oxid nanokapillárisok irányeloszlását határoztam meg STIM módszerrel. Igazoltam, hogy egy-egy doménon belül a kapillárisok a $15\ \mu\text{m}$ -es mélység végig párhuzamosak, a feltételezéseknek megfelelően. A mintát elforgatva megállapítottam, hogy a szomszédos domének kapillárisirányai között $\sim 2^\circ$ eltérés van. Hasonló módon polikarbonát membránban nehézion-nyomok kimarásával létrehozott véletlenszerűen elhelyezkedő nanokapillárisok irányeloszlását határoztam meg. Megmutattam, hogy az egyedi kapillárisok irányeloszlása a nanokapillárisok geometriai nyílásszögénél (ami kb. $0,3^\circ$) – a nehézionok besugárzási paramétereivel korrelálva – lényegesen nagyobb szórást mutat (kb. $0,95^\circ$).

A harmadik fejezetben a *protonnyalábos íráshoz kapcsolódó fejlesztéseket* tárgyaltam.

Módszert dolgoztam ki kis töltésmennyiség mérésére. Megmutattam, hogy a szekunderelektron-hozam – adott anyag és sima felület esetén – arányos a protonnyaláb által bevitt töltéssel, így használható a töltés monitorozására. Az SU-8 epoxy alapú rezisztanyagot vizsgálva igazoltam, hogy az egységnyi töltés által kiváltott jelek közül a szekunderelektron-hozam a legnagyobb intenzitású – az addigi gyakorlatban bevált RBS-normalizáláshoz képest minimum 30-szoros volt az így elért hozam

Elsőként készítettem nagyfelbontású fém mikrobélyegzőket PBW módszerrel létrehozott polimer mikrostruktúrákból nikkel- és rézgalvanizálással. Demonstráltam a sorozatgyártás lehetőségét későbbi innovatív alkalmazásokhoz.

Új típusú, javított felületi minőségű tesztmintát – kalibrált rácsállandójú öntartó rézrácsot – készítettem a protonnyaláb méretének meghatározására. Ezzel a mikro- és nanonyalábok mérete is a korábbiaknál lényegesen jobb ($\sim 100\ \text{nm}$ nagyságrendű) pontossággal meghatározható.

Hazai környezetben meghonosítottam a PBW módszert. Ehhez az általánosan elterjedt poli(metil-metakrilát) (PMMA) polimer, valamint a fényérzékeny Foturan üveg mellett a hazai gyakorlatban radondetektálásra használt CR-39 néven ismert poliallil-diglikol-karbonát (PADC) anyagot használtam. Megvizsgáltam a protonok

által a Foturan és CR-39 anyagba bevitt roncsolás mértékét és a roncsolt tartomány marási tulajdonságait. Meghatároztam a CR-39 protonokra vonatkozó dóziszérzékenységet, majd megmutattam, hogy az érzékenység megnövelhető a besugárzás utáni CO₂ kezeléssel.

Végül a negyedik fejezetben *protonnyalábos írással mikrooptikai és mikrofluidikai alkalmazásokat* mutattam be.

Passzív optikai hullámvezetőt készítettem PBW módszerrel PMMA-ban a felület alatt a protonok behatolási mélysége által meghatározott mélységben. PMMA és poli(dimetil-sziloxán) (PDMS) anyagok esetében is elsőként határoztam meg a protonbesugárzás hatására bekövetkező törésmutató-változás nagyságát a mélység függvényében. Megmutattam, hogy besugárzás hatására keletkező tömörödés PDMS-ben sokkal jeletősebb, mint PMMA-ban vagy különböző üvegekben, majd ezen az elven a felületen működő optikai eszközöket (diffrakciós rácsokat, konvex mikrolencsákat) hoztam létre a PBW módszerrel.

Megterveztünk és elkészítettünk egy mikroturbinát, ami a világon az első mozgó alkatrészt tartalmazó – PBW és porózus szilícium marással kombinált módon készült – szilícium eszköz volt. A szingapúri csoport elismeri ennek a munkának a jelentőségét azzal, hogy szerepelteti az ipari potenciális felhasználók figyelmébe ajánlott pbeam.com weblapon.

Egy olyan új mikrofluidikai eszközt terveztünk és valósítottunk meg, amely döntött oszlopok segítségével a cirkuláló ráksejtek kiszűrésére alkalmas. A hagyományos litográfiai eljárásokkal megvalósíthatatlan döntött oszlopok megnövelték a funkcionális felületet, így a kialakuló különleges áramlástanai viselkedés elősegíti a funkcionális felület és a folyadék kölcsönhatását. Ezt a munkát a Pannon Egyetem Lendület kutatócsoportjával és az MFA-val együttműködve egy általam vezetett OTKA projekt keretében végeztük.

A Van de Graff-gyorsító elmúlt kb. 50 éves kihatásait tekintve az új Tandetron esetében is az várható, hogy az Atomki alapvető infrastruktúrájaként több évtizeden át fogja meghatározni az intézet kutatási lehetőségeit.

Köszönetnyilvánítás

Köszönetemet fejezem ki az Atomki volt és jelenlegi igazgatóinak – Pálinkás Józsefnek, Lovas Rezsőnek, Fülöp Zsoltnak és Dombrádi Zsoltnak –, hogy mindvégig támogatták munkámat és általában a részecskegyorsítókra alapozott kutatásokat Debrecenben.

Kísérleti kutatások esetén az eredmények csak csoportmunkában érhetők el. Az Atomkiban végzett kísérletek esetén az Elektrosztatikus Gyorsítók Osztálya, az Ionnyaláb-fizikai Laboratórium és a Tandetron Laboratórium munkatársait illeti köszönet.

Külön kiemelem Kiss Árpád Zoltán nevét, aki PhD témavezetőm volt, és az azóta eltelt évtizedekben is figyelemmel kísérte munkámat, valamint abban is sokat segített, hogy magam is PhD témavezetővé váljak. A dolgozat megírását is rengeteg konzultációval segítette, ezt is nagyon köszönöm.

A nemzetközi együttműködések keretében, külföldi intézetekben végzett mérések esetén köszönettel tartozom az Oxfordi Egyetem, a Szingapúri Egyetem, és a csehországi Magfizikai Intézet (Řež) munkatársainak. Közülük is kiemelendő Geoff Grime, Frank Watt, Andrew Bettiol, Vladimír Havránek és Anna Macková neve, akiktől különösen sok segítséget kaptam.

Az Atomki gyorsítóin végzett kísérletek (a több ezer óra nyalábidő) nem lehetnek volna sikeresek a gyorsítómérnökök és üzemeltetők lelkiismeretes és szorgalmas munkája nélkül.

A kutatások anyagi feltételeit számos sikeres pályázat teremtette meg. Az OTKA A080 műszerpályázat, a GVOP-3.2.1.-2004-04-0402/3.0, az MTA Infrastruktúra és a GINOP-2.3.3-15-2016-00005 projektek, segítségével jelentősen sikerült fejleszteni az Atomki kutatási infrastruktúráját. Kutatási projektek: OTKA (T025771, T032264, M036324, M041939, F042474, K108366), a bilaterális (NKM-8/2014, NKM-7/2015, TéT OMFB-00106/2005 GR-3/03, magyar-cseh Akadémia-közi együttműködések, TÁMOP 4.2.2.A-11/1/KONV-2012-0036 projekt, a CANAM (Center of Accelerators and Nuclear Analytical Methods MEYS LM2011019), a Bolyai Ösztöndíj (2002-2005 zárójelentés értékelése „kiemelkedő”), és a H2020 RADIATE (824096).

A dolgozat és több pályázat megírásában nyújtott tanácsaiért és segítségéért külön köszönet illeti Sulik Bélát.

A támogatást és türelmet köszönöm a családomnak.

Irodalomjegyzék

- [1] S.A.E. Johansson, J.L. Campbell, K.G. Malmqvist (ed.): *Particle-Induced X-Ray Emission Spectrometry (PIXE)*, John Wiley & Sons (1995)
- [2] W.-K. Chu, J.W. Mayer, M.-A. Nicolet (ed.): *Backscattering Spectrometry*, Academic Press, New York (1978)
- [3] Á.Z. Kiss *et al.*, J. Radioanal. Nucl. Chem. **89** (1985) 123.
- [4] Á.Z. Kiss *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 85** (1994) 118.
- [5] F. Watt *et al.*, Materials Today **10** (2007) 20.
- [6] Nagy Gyula: *Mikrofókuszált protonnyaláb terelése szigetelő kapillárisal.* PhD értekezés (2019) <https://dea.lib.unideb.hu/dea/handle/2437/273871>
- [7] Á.Z. Kiss *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **203** (1982) 107.
- [8] <https://www.ph.unimelb.edu.au/marco/manuals/pram-manual.pdf>
- [9] M.B.H. Breese *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 158** (1999) 48.
- [10] <http://www.ujf.cas.cz/en/research-development/open-access/>
- [11] <http://www.highvolteng.com>
- [12] M. Shamsuzzoha Basunia, Nucl. Data Sheets **114** (2013) 1189.
- [13] F. Ajzenberg-Selove, Nucl. Phys. **A 523** (1991) 1.
- [14] G. Audi *et al.*, Nucl. Data Sheets **120** (2014) 1.
- [15] <https://fizika.unideb.hu>
- [16] J.B. Marion, Rev. Mod. Phys. **38** (1966) 660.
- [17] M.L. Roush *et al.*, Nucl. Phys. **A 147** (1970) 235.
- [18] J.L. Colaux *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 349** (2015) 173.
- [19] <http://www.srim.org>
- [20] F. Watt *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 306** (2013) 6.
- [21] J.A. van Kan *et al.*, Appl. Surf. Sci. **310** (2014) 100.
- [22] <http://www.microbeams.co.uk>
- [23] G.W. Grime, Nucl. Instr. Meth. **B 306** (2013) 76.
- [24] L. Bartha, I. Uzonyi, Nucl. Instr. Meth. **B 161–163** (2000) 339.
- [25] I. Burducea *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 359** (2015) 12.
- [26] R.G. Musket, Nucl. Instr. Meth. **B 15** (1986) 735.
- [27] T. Calligaro *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 109–110** (1996) 125.
- [28] J.L. Campbell *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 130** (1997) 608.
- [29] I. Uzonyi *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 139** (1998) 192.
- [30] Z. Elekes *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 158** (1999) 209.
- [31] Gy. Szabó, I. Borbély-Kiss, Nucl. Instr. Meth. **B 75** (1993) 123.
- [32] Z. Elekes *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 168** (2000) 305.
- [33] J.R. Tesmer, M.A. Nastasi (ed.): *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis*, Materials Research Society, (1995)
- [34] E. Koltay, F. Pászti, Á.Z. Kiss: *Chem. App. Ion Acc*, Ch. 33 in A. Vértes, S. Nagy, Z. Klencsár, R.G. Lovas, F. Rösch (ed.): *Handbook Nucl. Chem*, Springer (2011)
- [35] J. Dombóvári *et al.*, J. Anal. At. Spectrom. **14** (1999) 553.
- [36] Z. Elekes *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 190** (2002) 291.
- [37] G.Á. Sziki *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 210** (2003) 478.
- [38] U. Wätjen, A. Plompen, Nucl. Instr. Meth. **B 104** (1995) 166.
- [39] G.J.F. Legge *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 77** (1993) 153.
- [40] G.W. Grime *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 54** (1991) 52.
- [41] G.W. Grime, M. Dawson: Nucl. Instr. Meth. **B 89** (1994) 223-228.

- [42] F. Keller *et al.*, J. Electrochem. Soc. **100** (1953) 411.
- [43] H. Masuda, K. Fukuda, Science **268** (1995) 1466.
- [44] A. Vlad *et al.*, Nanotechnology **17** (2006) 4873.
- [45] S. Mátéfi-Tempfli *et al.*, J. Mater. Sci. **20** (2009) 249.
- [46] O. Rabin *et al.*, Adv. Funct. Mater. **13** (2003) 631.
- [47] S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, Adv. Mater. **21** (2009) 4005.
- [48] S. Mátéfi-Tempfli *et al.*, Nanotechnology **17** (2006) 3915.
- [49] A.R. Milosavljević *et al.*, Phys. Rev. **A 75** (2007) 030901(R).
- [50] A.R. Milosavljević *et al.*, Europhys. Lett. **86** (2009) 23001.
- [51] N. Stolterfoht *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 133201.
- [52] S. Mátéfi-Tempfli *et al.*, Thin Solid Films **516** (2008) 3735.
- [53] H. Kaboosi *et al.*, Afr. J. Microbiol. Res. **4** (2010) 671.
- [54] D. Li *et al.*, J. Microbiol. Meth. **81** (2010) 33.
- [55] A. Angyal *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 268** (2010) 2211.
- [56] <http://www.millipore.com>
- [57] <http://www.hamamatsu.com>
- [58] A. Simon, G. Kalinka, Nucl. Instr. Meth. **B 231** (2005) 507.
- [59] M.B.H. Breese *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 77** (1993) 169.
- [60] S.V. Springham *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 130** (1997) 155.
- [61] F. Watt *et al.*, MRS Bulletin **25** (2000) 33.
- [62] J.A. van Kan *et al.*, Microsyst. Technol. **6** (2000) 82.
- [63] G.E. Moore, Electronics **38** (1965) 114.
- [64] <http://www.itrs2.net/itrs-reports.html>
- [65] Y. Xia, G.M. Whitesides, Angew. Chem. Int. Ed. **37** (1999) 550.
- [66] R.F. Pease, Nature **417** (2002) 802.
- [67] P. Hovington, Scanning **19** (1997) 1-14, 20-28, 29-35.
- [68] S. Reyntjens, R. Puers, J. Micromech. & Microeng. **11** (2002) 287.
- [69] P. Rai-Choudhury (ed.): *Handbook of Microlithography, Micromachining and Micro-fabrication*, SPIE Press Monograph (1997)
- [70] C.N.B. Udalagama *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 260** (2007) 384.
- [71] J.A. van Kan *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 260** (2007) 460.
- [72] M.S.M. Saifullah *et al.*, Nano Letters **3** (2003) 1587.
- [73] H. Namatsu *et al.*, Microelect. Eng. **41-42** (1998) 331.
- [74] I. Adesida, Nucl. Instr. Meth. **B 7-8** (1985) 923.
- [75] M. Yamaguchi *et al.*, J. Appl. Phys. **80** (1996) 4916.
- [76] P. Polesello *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 158** (1999) 173.
- [77] M.B.H. Breese *et al.*, Phys. Rev. **B 73** (2006) 035428.
- [78] E.J. Teo *et al.*, Appl. Phys. Lett. **84** (2004) 3202.
- [79] A.A. Bettiol *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 181** (2001) 49.
- [80] D. Hasselkamp (ed.): *Kinetic electron emission from solid surfaces under ion bombardment*, Ch. 1 in *Particle Induced Electron Emission II, Springer Tracts in Modern Physics*, Vol. 123, Springer (1992)
- [81] F.A. Lowenheim: *Electroplating*, McGraw-Hill, New York (1978), pp. 188-225.
- [82] J.L. Sanchez *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 136-138** (1998) 385.
- [83] F. Watt *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 104** (1995) 101.
- [84] D.N. Jamieson *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 190** (2002) 54.
- [85] F. Watt *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 136-138** (1998) 313.
- [86] <http://www.agarscientific.com>
- [87] <http://www.irmm.jrc.be>
- [88] U. Wätjen *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 161-163** (2000) 359.

- [89] D.G. de Kerckhove *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 136–138** (1998) 379.
- [90] F. Watt, Nucl. Instr. Meth. **B 158** (1999) 165.
- [91] J.A. van Kan *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 158** (1999) 179.
- [92] MGT Mikroglas Technik AG, Mainz, Germany.
- [93] T.R. Dietrich *et al.*, Microelect. Eng. **30** (1996) 497.
- [94] M. Abraham *et al.*, *MRS 2002 Fall Meeting, Symposium H: Three-Dimensional Nanoengineered Assemblies*.
- [95] I. Gomez-Morilla *et al.*, 3rd Conf. on Postgrad. Res. in Electronics, Photonics, Communications and Software, 9–11 April 2001, Keele, UK
- [96] A.A. Bettiol *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 231** (2005) 400.
- [97] Gy. Somogyi *et al.*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. **8** (1984) 61.
- [98] G.W. Grime, M. Dawson, Nucl. Instr. Meth. **B 104** (1995) 107.
- [99] E.V. Benton *et al.*, Nucl. Tracks **12** (1986) 79.
- [100] G.Á. Sziki *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 219** (2004) 420.
- [101] J.A. van Kan *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 158** (1999) 179.
- [102] I. Csige *et al.*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. **B 15** (1988) 179.
- [103] I. Csige, Radiat. Meas. **B 28** (1997) 171.
- [104] M.J. Rooks *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. **B 20** (2002) 2937.
- [105] I. Borbély-Kiss *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 12** (1985) 496.
- [106] W.F.X. Frank *et al.*, Proc. SPIE **10285** (1996) 65.
- [107] W.F.X. Frank *et al.*, Proc. SPIE **1559** (1991) 344.
- [108] M. Hikita *et al.*, Appl. Phys. Lett. **63** (1993) 1161.
- [109] W. Wang *et al.*, Appl. Phys. Lett. **65** (1994) 929.
- [110] M.B.J. Diemeer *et al.*, Electron. Lett. **26** (1990) 379.
- [111] Y. Shi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **58** (1991) 1131.
- [112] D.M. Ruck *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 106** (1995) 447.
- [113] W. Hong *et al.*, Appl. Surf. Sci. **169–170** (2001) 428.
- [114] A. Roberts, M.L. von Bibra, J. Lightwave Technol. **14** (11) (1996) 2554.
- [115] M.L. von Bibra *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 168** (2000) 47.
- [116] J.A. van Kan *et al.*, Sens. Actuators **A 92** (2001) 370.
- [117] F. Schrempel *et al.*, Appl. Surf. Sci. **189** (2002) 102.
- [118] *Guide to Using WVASE32[®]*, J.A. Woollam Co. Inc.
- [119] D.E. Aspnes, J.B. Theeten, Phys. Rev. Lett. **43** (1979) 1046.
- [120] S. Cho *et al.*, Opt. Commun. **282** (2009) 1317.
- [121] B. Schnyder *et al.*, Surf. Sci. **532–535** (2003) 1067.
- [122] E.D. Palik: *Handbook of Optical Constants of Solids, 1–2*. Academic Press (1985–1991)
- [123] R. Huszánk *et al.*, J. Phys. Chem. **C 117** (2013) 25884.
- [124] T. Hino *et al.*, Vacuum **83** (2009) 506.
- [125] R. Huszánk *et al.*, Langmuir **27** (2011) 3842.
- [126] B. Pignataro *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B 191** (2002) 772.
- [127] A. Charlesby, Proc. R. Soc. **A 230** (1955) 120.
- [128] L.E. St. Pierre *et al.*, J. Polym. Sci. **36** (1959) 105.
- [129] A.A. Miller, J. Am. Chem. Soc. **82** (1960) 3519.
- [130] E.A. Waddell *et al.*, Appl. Surf. Sci. **254** (2008) 5314.
- [131] M. Kawashita *et al.*, Acta Biomater. **5** (2009) 621.
- [132] R. Huszánk *et al.*, J. Phys. Chem. **C 117** (2013) 25884.
- [133] R. Huszánk: *Irradiation induced chemical and physical effects in silicones*, in A. Tiwari, M.D. Soucek (ed.): *Concise Encyclopedia of High Performance Silicones*, John Wiley & Sons (2014) 75-84.
- [134] R. Huszánk *et al.*, Langmuir **27** (2011) 3842.

- [135] T.-K. Shih *et al.*, *Microelect. Eng.* **83** (2006) 2499.
- [136] X. Zeng, H. Jiang, *J. Microelectromech. Syst.* **17** (2008) 1210.
- [137] E. Roy *et al.*, *Microelect. Eng.* **86** (2009) 2255.
- [138] K. Saito *et al.*, *Nucl. Instr. Meth.* **B 306** (2013) 284.
- [139] K. Zhong *et al.*, *Nucl. Instr. Meth.* **125** (2014) 2413.
- [140] B. Aldalali *et al.*, *Micromachines* **5** (2014) 275.
- [141] H.J. Whitlow *et al.*, *Adv. Mater. Res.* **74** (2009) 129.
- [142] P. Gravesen *et al.*, *J. Micromech. & Microeng.* **3** (1993) 168.
- [143] N.T. Nguyen, Z. Wu, *J. Micromech. & Microeng.* **15** (2005) R1.
- [144] D.J. Laser, J.G. Santiago, *J. Micromech. & Microeng.* **14** (2004) R35.
- [145] J. Pihl *et al.*, *Drug Discov. Today* **10** (2005) 1377.
- [146] H. Becker, C. Gärtner, *Anal. Bioanal. Chem.* **390** (2008) 89.
- [147] A. Abgrall, A.M. Gué, *J. Micromech. & Microeng.* **17** (2007) R15.
- [148] R. Nayve *et al.*, *J. Microelectromech. Syst.* **13** (2004) 814.
- [149] P. Koltay *et al.*, *Sens. Actuators A* **116** (2004) 483.
- [150] L. Beccai *et al.*, *Sens. Actuators A* **120** (2005) 370.
- [151] T.J. Kaiser, M.G. Allen, *J. Microelectromech. Syst.* **12** (2003) 21.
- [152] A. Simon *et al.*, *Nucl. Instr. Meth.* **B 158** (1999) 658.
- [153] S. Nagrath *et al.*, *Nature* **450** (2007) 1235.
- [154] M.N. Dickson *et al.*, *Biomicrofluidics* **5** (2011) 034119.
- [155] D. Wlodkowic, J.M. Cooper, *Anal. Bioanal. Chem.* **398** (2010) 193.
- [156] D. Horák *et al.*, *J. Biomed. Mat. Res. Part A* **101** (2013) 23.
- [157] S.L. Stott *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA (PNAS)* **107** (2010) 18392.
- [158] T.F. Didar, M. Tabrizian, *Lab on a Chip* **10** (2010) 3043.
- [159] H. Lan, H. Liu, *J. Nanosci. Nanotechnol.* **13** (2013) 3145.
- [160] V.N. Truskett, M.P. C. Watts, *Trends Biotechnol.* **24** (2006) 312.
- [161] G. Járvas *et al.*, *J. Chromatogr. Sci.* **53** (2015) 411.
- [162] G. Járvas, A. Guttman, *Trends Biotechnol.* **31** (2013) 696.
- [163] B. Kiss *et al.*, *Exp. Dermatol.* **B 17** (2008) 659.
- [164] R.I. Kostov *et al.*, *Geoarchaeology* **27** (2012) 457.
- [165] Z. Szikszai *et al.*, *Techne* **43** (2016) 59.
- [166] Z. Szoboszlai *et al.*, *J. Hazard. Mater.* **203** (2012) 308.

A tézispontokhoz kapcsolódó saját közlemények

Az 1. fejezet témakörében

- [A1] 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. **B 210** (2003) 14-20.
- [A2] O. Romanenko, V. Havránek, A. Macková, M. Davidková, M. Cutroneo, A.G. Ponomarev, G.U.L. Nagy, J. Stammers, and **I. Rajta**: *Performance and application of heavy ion nuclear microbeam facility at the Nuclear Physics Institute in Řež, Czech Republic*. Rev. Sci. Instrum. **90** (2019) 013701 (12).
- [A3] **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. **A 880** (2018) 125-130.
- [A4] **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. **B 449** (2019) 94-98.

A 2. fejezet témakörében

- [B1] I. Uzonyi, **I. Rajta**, L. Bartha, Á.Z. Kiss, A. Nagy: *Realization of the simultaneous micro-PIXE analysis of heavy and light elements at a nuclear microprobe*. Nucl. Instr. Meth. **B 181** (2001) 193-198.
- [B2] G.Á. Szíki, I. Uzonyi, E. Dobos, **I. Rajta**, T.K. Biró, S. Nagy, Á.Z. Kiss: *A new micro-DIGE set-up for the analysis of light elements*. Nucl. Instr. Meth. **B 219** (2004) 508-513.
- [B3] U. Wätjen, I. Bársony, G.W. Grime, **I. Rajta**: *On the interpretation of micro-PIXE measurements on a prototype microstructured reference material*. Nucl. Instr. Meth. **B 150** (1999) 532-537.
- [B4] **I. Rajta**, G.A.B. Gál, S.Z. Szilasi, Z. Juhász, S. Biri, M. Mátéfi-Tempfli, S. Mátéfi-Tempfli: *Nanochannel alignment analysis by scanning transmission ion microscopy*. Nanotechnology **21** (2010) 295704 (4).
- [B5] G.A.B. Gál, **I. Rajta**, S.Z. Szilasi, Z. Juhász, S. Biri, Cs. Cserhádi, A. Csik, B. Sulik: *Scanning transmission ion microscopy of polycarbonate nanocapillaries*. Nucl. Instr. Meth. **B 269** (2011) 2322-2325.

A 3. fejezet témakörében

- [C1] A.A. Bettiol, **I. Rajta**, E.J. Teo, J.A. van Kan, F. Watt: *Proton beam micromachining: electron emission from SU-8 resist during ion beam irradiation*. Nucl. Instr. Meth. **B 190** (2002) 154-159.
- [C2] J.A. van Kan, **I. Rajta**, K. Ansari, A.A. Bettiol, F. Watt: *Nickel and copper electroplating of proton beam micromachined SU-8 resist*. Microsyst. Technol. **8** (2002) 383-386.
- [C3] F. Watt, **I. Rajta**, J.A. van Kan, A.A. Bettiol, T. Osipowicz: *Proton beam micromachined resolution standards for nuclear microprobes*. Nucl. Instr. Meth. **B 190** (2002) 306-311.
- [C4] **I. Rajta**, I. Gómez-Morilla, M.H. Abraham, Á.Z. Kiss: *Proton beam micromachining on PMMA, Foturan and CR-39 materials*. Nucl. Instr. Meth. **B 210** (2003) 260-265.
- [C5] **I. Rajta**, E. Baradács, A.A. Bettiol, I. Csige, K. Tőkési, L. Budai, Á.Z. Kiss: *Optimization of particle fluence in micromachining of CR-39*. Nucl. Instr. Meth. **B 231** (2005) 384-388.
- [C6] E. Baradács, I. Csige, **I. Rajta**: *CO₂ treatment and vacuum effects in proton beam micromachining of PADC*. Radiation Measurements **43** (2008) 1354-1356.

A 4. fejezet témakörében

- [D1] T.C. Sum, A.A. Bettiol, H.L. Seng, **I. Rajta**, J.A. van Kan, F. Watt: *Proton beam writing of passive waveguides in PMMA*. Nucl. Instr. Meth. **B 210** (2003) 266-271.
- [D2] **I. Rajta**, S.Z. Szilasi, J. Budai, Z. Tóth, P. Petrik, E. Baradács: *Refractive index depth profile in PMMA due to proton irradiation*. Nucl. Instr. Meth. **B 260** (2007) 400-404.
- [D3] S.Z. Szilasi, J. Budai, Z. Pápa, R. Huszánk, Z. Tóth, **I. Rajta**: *Refractive index depth profile and its relaxation in polydimethylsiloxane (PDMS) due to proton irradiation*. Materials Chemistry and Physics **131** (2011) 370-374.
- [D4] S.Z. Szilasi, J. Kokavecz, R. Huszánk, **I. Rajta**: *Compaction of poly(dimethylsiloxane)(PDMS) due to proton beam irradiation*. Appl. Surf. Sci. **257** (2011) 4612-4615.
- [D5] S.Z. Szilasi, N. Hegman, A. Csik, **I. Rajta**: *Creation of convex microlenses in PDMS with focused MeV ion beam*. Microelect. Eng. **88** (2011) 2885-2888.
- [D6] G.U.L. Nagy, V. Lavrentiev, I. Bányász, S.Z. Szilasi, V. Havránek, V. Voseček, 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.

- [D7] **I. Rajta**, S.Z. Szilasi, P. Fürjes, Z. Fekete, Cs. Dücső: *Si micro-turbine by proton beam writing and porous silicon micromachining*. Nucl. Instr. Meth. **B 267** (2009) 2292-2295.
- [D8] **I. Rajta**, R. Huszánk, A.T.T. Szabó, G.U.L. Nagy, S.Z. 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.

Egyéb saját publikációk

Ebben a kategóriában azokat a fontosabb saját publikációimat sorolom fel, melyek nem képezik a tézispontok alapját.

- [S1] **I. Rajta**, I. Borbély-Kiss, Gy. Móri, L. Bartha, E. Koltay, Á.Z. Kiss: *The new Atomki scanning proton microprobe*. Nucl. Instr. Meth. **B 109/110** (1996) 148-153.
- [S2] Cs. Dücső, **I. Rajta**, P. Fürjes, E. Baradács: *Concept for processing of silicon check valves by proton beam micromachining*. Nucl. Instr. Meth. **B 260** (2007) 409-413.
- [S3] Z. Fekete, B. Sinkovics, **I. Rajta**, G.A.B. Gál, P. Fürjes: *Characterization of the end-of-range geometric effects in complex 3D silicon micro-components formed by proton beam writing*. J. Micromech. & Microeng. **20** (2010) 064015 (6).
- [S4] R. Huszánk, **I. Rajta**, Cs. Cserháti: *Proton beam lithography in negative tone liquid phase PDMS polymer resist*. Nucl. Instr. Meth. **B 348** (2015) 213-217.
- [S5] **I. Rajta**, G.W. Grime, Zs. Kertész, I. Borbély-Kiss, E. Koltay: *Characterisation of single aerosol particles from Debrecen region, Hungary using microPIXE*. Nucl. Instr. Meth. **B 136** (1998) 324-328.
- [S6] Gy. Gyürky, A. Ornelas, Zs. Fülöp, Z. Halász, G.G. Kiss, T. Szücs, R. Huszánk, I. Hornyák, **I. Rajta**, I.K. Vajda: *Cross section measurement of the astrophysically important $^{17}\text{O}(p,\gamma)^{18}\text{F}$ reaction in a wide energy range*. Phys. Rev. **C 95** (2017) 5805.
- [S7] S.Z. Szilasi, R. Huszánk, A. Csik, Cs. Cserháti, **I. Rajta**: *PDMS patterning by proton beam*. Nucl. Instr. Meth. **B 267** (2009) 2296-2298.
- [S8] R. Huszánk, S.Z. Szilasi, **I. Rajta**, A. Csik: *Fabrication of optical devices in poly(dimethylsiloxane) by proton microbeam*. Opt. Commun. **283** (2010) 176-180.
- [S9] I. Bányász, **I. Rajta**, G.U.L. Nagy, Z. Zolnai, V. Havranek, S. Pelli, M. Veres, S. Berneschi, G. Nunzi-Conti, and G. C. Righini: *Fabrication of optical channel waveguides in crystals and glasses using macro- and micro ion beams*. Nucl. Instr. Meth. **B 331** (2014) 157-162.
- [S10] I. Bányász, E. Szilágyi, **I. Rajta**, G.U.L. Nagy, S. Pelli, G. Nunzi Conti, S. Berneschi, V. Havranek, V. Voseček, N. Nagy, Z. Szabó, M. Veres, A. Speghini: *Fabrication of low loss channel waveguide in tungsten-tellurite glass by 11 MeV carbon ion microbeam for telecom C band*. Opt. Mater. **X 4** (2019) 100035 (5).
- [S11] **I. Rajta**, M. Chatzichristidi, E. Baradács, Cs. Cserháti, I. Raptis, K. Manoli, E.S. Valamontes: *Proton beam micromachined buried microchannels in negative tone resist materials*. Nucl. Instr. Meth. **B 260** (2007) 414-418.
- [S12] G. Járvas, T. Varga, M. Szigeti, L. Hajba, P. Fürjes, **I. Rajta**, A. Guttman: *Tilted pillar array fabrication by the combination of proton beam writing and soft lithography for microfluidic cell capture Part 2: Image sequence analysis based evaluation and biological application*. Electrophoresis **39** (2018) 537-539.

- [S13] A. Simon, F. Pászti, I. Uzonyi, A. Manuaba, Á.Z. Kiss, **I. Rajta**: *Observation of surface topography using an RBS microbeam*. Nucl. Instr. Meth. **B 136** (1998) 344-349.
- [S14] **Rajta I.**: *Protonnyalábos mikromegmunkálás: Egy új, direkt írásos, 3-dimenziós litográfias eljárás*. Fizikai Szemle **57** (2007) 187-190.
- [S15] **Rajta I.**, Vajda I., Biri S., Sulik B., Gyürky Gy., Soltész G., Szúcs Zs., Fülöp Zs.: *Az MTA Atomki Tandetron Laboratóriuma – egy részecskegyorsítóra alapozott új kutatási infrastruktúra*. Fizikai Szemle **67** (2017) 244-250.

Rövidítések jegyzéke

A dolgozatban előforduló főbb rövidítések angol és magyar jelentése.

AFM	Atomic Force Microscopy	atomerő-mikroszkópia
CEM	Channel Electron Multiplier	csatorna elektronsokszorozó
CFD	Computational Fluid Dynamics	numerikus áramlástani modell
DIC	Differential Interference Contrast	differenciális interferencia kontraszt
DIGE	Deuteron Induced Gamma-ray Emission	deuteronokkal indukált gamma-emisszió
DRIE	Deep Reactive Ion Etching	mély reaktív ionmarás
EBL	Electron Beam Lithography	elektronnyalábos litográfia
EBS	Elastic Backscattering Spectrometry	rugalmas visszaszórás spektrometria
FIB	Focussed Ion Beam technology	fókuszált ionnyaláb-technológia
FWHM	Full Width at Half Maximum	félértékszélesség
GVM	Generating Voltmeter	rotációs voltmérő
HCI	Highly Charged Ions	nagyöltésű ionok
HPGe	High Purity Germanium detector	nagytisztaságú germániumdetektor
HVEE	High Voltage Engineering Europa B.V.	
IBA	Ion Beam Analysis	ionnyaláb-analízis
IBIC	Ion Beam Induced Charge/Current	ionnyalábokkal indukált töltés/áram
IBIL	Ion Beam Induced Luminescence	ionnyalábokkal indukált lumineszcencia
IRMM	Institute for Reference Materials and Measurements	
LET	Linear Energy Transfer	lineáris energia transzfer
LIGA	Lithographie, Galvanoformung, Abformung (német)	litográfia, galvanizálás, öntés
MCCD	Microfluidic Cell Capture Device	mikrofluidikai sejtbefogó chip
MEMS	MicroElectroMechanical Systems	mikroelektromechanikai rendszerek
NRA	Nuclear Reaction Analysis	magreakciós analízis
NUS	National University of Singapore	
OM	Oxford Microbeams Ltd.	
PADC	PolyAllyl Diglycol Carbonate	poliallil diglikol karbonát
PBW	Proton Beam (P-beam) Writing	protonnyalábos írás
PDMS	Poly(DiMethylSiloxane)	poli(dimetilsziloxán)
PIGE	Proton Induced Gamma-ray Emission	protonokkal indukált gamma-emisszió
PIXE	Proton Induced X-ray Emission	protonokkal indukált röntgenemisszió
PMMA	Poly(Methyl MethAcrylate)	poli(metil-metakrilát)
RBS	Rutherford Backscattering Spectrometry	Rutherford-visszaszórás spektrometria
SDD	Silicon Drift Detector	szilícium drift detektor
SEM	Scanning Electron Microscopy	pásztázú elektronmikroszkópia
SSNTD	Solid State Nuclear Track Detector	szilárdtest nyomdetektor
STIM	Scanning Transmission Ion Microscopy	pásztázó transzmissziós ionmikroszkópia
TV	Terminal Voltage	terminálfeszültség
UTW	Ultra Thin Window detector	ultravékony-ablakú detektor
VdG	Van de Graaff accelerator	Van de Graaff-gyorsító