

Bírálat

Rajta István „Mikromegmunkálás és ionnyaláb-analízis pásztázó ionszondákkal” című MTA doktori értekezéséről

Rajta István az Atommagkutató Intézet munkatársa a doktori értekezésében és a megfogalmazott téziseiben foglalta össze az elmúlt több mint 20 évben iongyorsítókkal végzett kutatómunkájának főbb eredményeit. Az anyagvizsgálatban az ionsugaras módszerek kiemelkedő szerepet játszanak, mert abszolút mennyiségi és mélységi információt szolgáltathatnak roncsolásmentes módon a vizsgált minta felületközeli régiójából. Az ionnyalábok alkalmasak a besugárzott anyag fizikai tulajdonságainak megváltoztatására is, ezt használja ki többek között a félvezető mikrotechnológiában alkalmazott implantációs adalékolási módszer is.

A szerző munkássága többretegű: egyrészt az ionsugaras analitikai módszert továbbfejlesztette, ezáltal akár nanométeres laterális felbontás is elérhető a minták vizsgálata során, másrészt kidolgozta és alkalmazta a fókuszált ionnyalábokkal történő háromdimenziós anyagmegmunkálási módszert. Értekezésében a jól publikált eredményeit mutatja be.

Az értekezés szép külalakú, olvasmányos, elütés gyakorlatilag nem fordul elő benne. A felsorolt hivatkozások mutatják a jelölt mély jártasságát a kutatott témákban. Az ábrák információgazdagok, jól olvashatók.

Az értekezés négy fejezetben tartalmazza a jelölt érdemi munkáját, ezeket a „Bevezetés” és „Az eredmények hasznosítása” valamint az „Összefoglalás és kitekintés” foglalja keretbe. A Bevezetésben összefoglalja motivációját, a munkája célját és alkalmazhatóságát.

Az első „Mikroszondától a nanoszondáig” című fejezet inkább a fejlesztett és alkalmazott berendezésekre fókuszál. A célkitűzésekben szereplő feladatok a meglévő és használható berendezésekkel nem valósíthatók meg, fejlesztésekre volt szükség. A jelölt több évet töltött külföldön, ahol elsajátította az ionoptika tervezésével és megépítésével kapcsolatos ismereteket. Hazatérve a megszerzett tudást az anyaintézetében és külföldi projektpartnerénél tudta hasznosítani.

A technológia fejlődését az anyagvizsgálati, analitikai módszereknek is követniük kell. A méretek drasztikus csökkenésével, a nanotechnológia megjelenésével az egyre nagyobb mélység- és laterális felbontóképességű módszerek szükségesek. A klasszikus ionsugár analitikai módszerek – RBS, ERD, PIXE, NRA, stb. un. makroszkópikus, a mm² nagyságrendbe eső ionnyalábot irányítanak a vizsgált mintára. Az ennél kisebb objektumok, a mikro- és nanorendszerek vagy biológiai minták vizsgálatára lényegesen kisebb, mikro- és nanonyalábokra van szükség. A megvalósításhoz összetett ionoptikai, fókuszáló elektromágneses lencsék alkalmazása szükséges. A szingapúri nukleáris mikroszkópia kutatóközpontban a jelölt sikerrel sajátította el az ionoptikai tervezés alapjait. Kidolgozott egy eljárást – azóta is alkalmazzák – az ionoptikai lencsék finomhangolására, világelső szubmikronos nagy fényességű ionnyalábot állított elő. A mágneses fókuszálás

optimalizálásával sikeresen hozott létre nemcsak proton, hanem C, O és Si mikronyalábot a csehországi társintézetben.

Az Atommagkutató Intézetben új iongyorsító beszerzését és üzembeállítását határozták el anyagtudományi, atomfizikai és nukleáris asztrfizikai kutatásokhoz. A jelölt az ionsugaras analitikai technika mind elméleti, mind eszközbeli mély ismereteire támaszkodva, lépésenként történt a szükséges berendezések specifikálása, beszerzése és beüzemelése. A kiépített rendszer egy világszínvonalú ionsugár laboratórium alapját képezi.

Nagyon értékes munkának tartom az ATOMKI-ban beüzemelt Tandetron gyorsítóberendezés energiakalibrációjára kidolgozott, több magreakciós rezonanciára alapozott módszerét. A magreakciók során lejátszódó fizikai folyamatok, a gerjesztett állapotból alapállapotba történő bomláskor keletkező részecske és gamma sugárzások alapos ismerete szükséges a pontos kalibrációhoz. A lefosztó gáz nyomása szintén hatással van az energiakalibrációra, ennek kimérése jelentős eredmény.

Kérdéseim: A magreakciók pontos méréséhez milyen mintákat, a rezonancia szélességéhez képest vastag vagy vékony mintákat használt? A rezonancia energiájának pontos megállapításához vékony minták alkalmazása esetleg előnyösebb lehetett volna? A magreakciós mérésekből megállapított nyaláb energiastabilitás hogyan függ a nyaláb energiájától?

A nanoszonda megtervezése, megépítése és a fókuszált nyaláb paramétereinek kísérleti megállapítása alapozta meg a fókuszált ionokkal végzett anyagvizsgálatokat és anyagmódosításokat.

Kérdéseim: A nanoszondához tervezett mérőkamrában milyen vákuumot lehet létrehozni? Van valamilyen lehetőség a kamrán belüli, ionsugár segített szénlerkódás minimalizálására? A nanopozicionáló mintatartó használatakor mi a scannelési stratégia – a minta felületé csak egyszer vagy többször járja be az ionsugár? A második esetben a mintatartó visszatérési pontossága is jelentősen befolyásolja a laterális felbontóképességet. Mi az alkalmazott mintatartó visszatérési pontossága? A nyaláb fényességére számított, illetve mért mérőszámok mellől hiányoznak az egységek, habár a szövegben korábban megadja ezeket, de jó lett volna az értékekhez is beírni. A következő szerepel az értekezésben: „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.” Sikerült ezeket kísérletileg is igazolni?

A következő, „Ionnyaláb-analitika” című fejezet összefoglalja a jelölt a mikro- és nanonyalábos ionanalitikai metodikai kísérleti fejlesztéseit. A könnyű elemek kis koncentrációinak pontos meghatározására kétdetektoros elrendezést valósított meg a kisebb és nagyobb energiájú karakterisztikus röntgensugárzás detektálásával. Az elrendezés lehetőséget ad a szinte az összes – könnyű és nehéz – elemek egyidejű, nagyérzékenységű vizsgálatára. A besugárzásra érzékeny, pl. művészeti tárgyak, geológiai és különleges anyagok vizsgálatakor jelentős előnyt jelent a módszer. Jól demonstrálják ezt a mágneses mélytengeri szferuláról felvett elem térképek (20. ábra).

A módszer további kiterjesztését jelenti deuteron gerjesztő nyaláb alkalmazása, ebben az esetben nemcsak a röntgen fotonok, hanem a magreakciókból származó gamma-emisszió is detektálható a közepes rendszámú elemek és azok izotópjainak meghatározására. A magreakciók alkalmazása jelentősen megnöveli a módszer mélységi felbontóképességét.

A kétdetektoros PIXE és DIGE módszer kidolgozásával kapcsolatban a következők a kérdéseim: Milyen mélységtartományból kaphatunk összetétel információt a vizsgált mintáról? A 20. ábrán elemtérképeket látunk, a Ni feliratú térképen csak a Ni koncentráció vagy a Ni+Fe összetétel látszik (a leírásból nem világos)? Deutérium nyaláb alkalmazása esetén milyen biztonságtechnikai problémák jelentkezhetnek? A 31. oldal első bekezdésében felsorolt magreakciók esetében detektálta-e a $(d,p\gamma)$ magreakcióban szimultán megjelenő protont is? Milyen plusz információt adhat, mikor érdemes a protont is detektálni?

Az ionsugaras analitikai közösség régóta törekszik a mérési körülmények, az alkalmazott mérési és kiértékelési módszerek egységesítésére annak érdekében, hogy a különböző laboratóriumokban elvégzett vizsgálatok összehasonlíthatók és megismételhetők legyenek. Ebbe a törekvésbe illik be a fókuszált ionnyalábok méretének meghatározására a jelölt részvételével kidolgozott mérőminta megtervezése és minősítése. A mérések során fellépő másodlagos hatások kiszűrése, magyarázata és figyelembe vétele a kiértékeléskor előremutató a közösség számára.

A mérőmintán végzett beható kiértékelő munka folytatása az Al_2O_3 nanokapillárisok geometria tulajdonságait vizsgáló gyakorlati feladat. A nanokapillárisok irányeloszlásának vizsgálata nem egyszerű feladat. Alapvetően a pásztázó és transzmissziós elektronmikroszkópia tűnik megfelelőnek a kapillárisok vizsgálatára. Azonban a elektronmikroszkópia csak nagyon lokális információt tud szolgáltatni a vizsgált mintáról. Nagy felületről, vagy a hosszútávú rendről már nem képes valós képet adni. A pásztázott fókuszált ionsugaras módszer viszont alkalmas a nyaláb mérete miatt a rövidtávú rend és a pásztázás miatt a hosszútávú rend meghatározására is. A bemutatott vizsgálatok is ezt támasztják alá. Viszonylag egyszerű módszerrel sikerült kimutatni a doménekbe rendeződött kapillárisok irányát és a domének közötti irányeltéréseket. Polikarbonát lemezekbe besugárzással létrehozhatók kapillárisok, de lényegesen rendezetlenebb módon, mint az Al_2O_3 nanokapillárisok esetében. Ilyen minták vizsgálata fókuszált ionnyalábokkal szintén új tudományos eredmény.

Kérdéseim a nanokapilláris minták vizsgálatával kapcsolatban: Az Al_2O_3 esetében milyen a kapilláris átmérők átlagos mérete és méreteloszlása? Az egyes más irányítottágú doménekben a méreteloszlás azonos? A következő állítás szerepel „Igazoltam, hogy egy-egy doménon belül a kapillárisok a 15 μm -es mélységig végig párhuzamosak, a feltételezéseknek megfelelően.” Kérem magyarázza meg, hogy falak párhuzamossága melyik mérésből és hogyan adódik. A kapillárisok vizsgálatakor fellép-e és számít-e az ionok csatornából való kiszóródása és a többszörös szórás miatti irányváltozás? Van-e a csatornahatáshoz hasonló becsatornázódás?

A „3. PBW – metodika és rezisztanyagok fejlesztése” című fejezetben a jelölt összefoglalja a szingapúri tartózkodása alatt kifejlesztett protonnyaláb írásos technikát (PBW) és annak

meghonosítását az Atommagkutató Intézetben. A protonszugaras írással mély háromdimenziós struktúrák alakíthatók ki a besugárzásra érzékeny anyagokban. Vizsgálta és sikeresen alkalmazta a nyomdetektor anyagként ismert CR-39 anyagot PWB célokra. PMMA és SU8 alkalmazhatóságát is bizonyította, valamint új anyagként a FUTURAN üveget is javasolja 3D struktúrák előállítására. Nyalábmonitorozó eljárást is kidolgozott, mely más fókuszált nyalábos technológiáknál is alkalmazható.

Munkája és a nagyfelbontású direkt írásos PWB eljárás jelentősége abban van, hogy mély, a felületre merőleges oldalfalú kisméretű akár szubmikronos struktúrák előállítása más módszerekkel nehézkes. A nagyenergiájú protonok nagyon kis szóródással hatolnak be az anyagba, ezért az általuk roncsolt térfogat erősen irányított az ionok mozgásával párhuzamos. A leginkább elterjedt elektronsugaras litográfiai eljárások hátránya, hogy az elektronok erősen szóródnak az anyagban, laterális irányban is jelentős távolságokig eljutva torzítják a kívánt profilt. Megfelelő besugárzási geometria és energia választásával protonnyalábos írással olyan, pl. ferde oldalfalú struktúrák is megvalósíthatók, amelyek más technológiákkal elképzelhetetlenek. Ezt a következő fejezetben bemutatott példákkal jól bizonyítja is a jelölt (4.3.2. fejezet). A módszer hátránya egyrészt a költséges és bonyolult iongyorsító és fókuszáló berendezés szükségessége, másrészt a direkt írásból adódó lassúsága, csak korlátozott felületen alkalmazható. Speciális, nagyigényű egyedi gyártmányok létrehozására viszont sok esetben a tömegtermelésben alkalmazott módszereknél jobb eredményeket szolgáltat.

A fejezethez kapcsolódó kérdéseim: A többszörös szórás és a laterális eltérés jelensége milyen hatással van a kialakuló struktúrára? A PWB módszernél a szükséges protonfluens 30–150 nC/mm². Ahhoz, hogy ezt a fluenst megfelelő idő alatt az anyagba lehessen juttatni, a fókuszált nyaláb áramsűrűsége meglehetősen nagy lehet. Okoz ez melegeledést, lokálisan nagyon magas hőmérsékletet a rezisztanyagban? Az alapvetően szigetelő rezisztanyagban a protonbesugárzás roncsolja a kémiai kötések. A töltésmonitorozásra kidolgozott módszernél a nagy fluensek esetében nem alakulhatnak ki lokális vezető csatornák a felület és a hordozó között a nagymértékű roncsolás következtében? Esetleg ez is befolyásolhatja a szekunder elektron hozamot? A 68. oldal utolsó bekezdésében a zárójelben szereplő ionfluensek mértékegysége helyesen cm⁻². A CO₂ kezelés milyen mechanizmussal növeli meg a CR-39 érzékenységét?

A „4. PBW – alkalmazások” fejezetben több példát mutat be a jelölt az ionsugaras írással megvalósított szerkezetekre. Az alkalmazások széleskörű tudományos együttműködésben valósultak meg. Az integrált mikro- és nanooptikai szerkezetek, lencsék, optikai hullámvezetők jelentősége folyamatosan nő, de speciális biológiai detektálási módszerek is hasonló szerkezeteket alkalmaznak. A direkt írásos technológiának jelentős szerepe lehet prototípusok elkészítésében, az olyan alkalmazásokban, ahol kis darabszám, de bonyolult, más módszerekkel nem megvalósítható szerkezetek használata a megkövetelt. A döntött oszlopok kialakítása mikrofluidikai eszközökben jelentős eredmény, más, hagyományos technológiai módszerekkel ilyen struktúra nem hozható létre.

Kérdéseim: PMMA esetében nagyobb törésmutató változás érhető el esetleg nehézion besugárzással? Függ a törésmutató változás a besugárzó ion tömegétől? Az 57. ábrán bemutatott hatótávolság ábrán az ionok eloszlása látszik pályájuk végén. A kiszélesedésben

mennyire játszik szerepet a többszörös szórás (multiple scattering) jelenség és ez hogyan függ az anyag összetételétől? A PDMS tömörödése vizsgálatok történt-e más felületi vizsgálat a polimerben bekövetkező kémiai és/vagy szerkezeti változások megfigyelésére (pl. FT-IR, Raman)? A „Megmutattam, hogy besugárzás hatására keletkező tömörödés PDMS-ben sokkal jelentősebb (~2 μm), mint PMMA-ban (~200 nm)” [D4].” állítást szerencsésebb lenne átfogalmazni, a tömörödés százalékos értékét megadni, mert az állításban szereplő értékek csak a kísérletben alkalmazott mintára, besugárzási paraméterekre igazak.

Összefoglalva a jelölt első fizikai elvekből kiindulva jelentős metodikai fejlesztéseket hajtott végre mikro- és nanonyalábok létrehozására, amelyek nagy laterális felbontóképességgel alkalmasak mikro- és nanoszerkezetek összetételének és struktúrájának meghatározására ionsugaras analitikai módszerekkel. A PIXE módszert kombinálta magreakciós analitikai módszerrel, deuteron nyalábot használva könnyű elemek koncentrációja is nagy pontossággal megállapítható. Az analizáló kamra és a szimultán használt detektorok optimális kialakításával egy mérésben lehetőség adódik közel az összes elem jelenlétének és mennyiségének mérésére.

Mikro- és nanonyalábok karakterizálására vizsgáló mintákat fejlesztett és valósított meg, amelyekkel a nyaláb geometriai paraméterei akár a nanométeres tartományban is megállapíthatók. A tesztminták széleskörű alkalmazásával a különböző laboratóriumokban végzett anyagvizsgálatok összehasonlíthatóbbá válnak, alkalmazásuk javasolt.

A protonnyalábos írás a hagyományos optikai és az elektronsugaras litográfia közötti űrt képes kitölteni. Fő előnye az egy lépésben megvalósítható háromdimenziós ábrakialakítás lehetősége. A jelölt értékes példákkal szemléltette a kidolgozott eljárás kvalitásait. Az optikai elemek ilyen méretskálán történő kialakítása fontos szerepet játszhat új optoelektronikai eszközök kidolgozásában.

Nem utolsó sorban a fentiekben részletezett kutatásokhoz elengedhetetlenül szükséges a ionsugaras analitikai infrastruktúra megléte. Rajta István vezetésével egy világszínvonalú ionsugaras anyagvizsgáló laboratórium épült és kezdte meg a működését az elmúlt években az ATOMKI-ban. A pásztázott mikro- és nanonyalábok fókuszálásával egyedülálló lehetőség jött létre az egyre jelentősebb szubmikronos struktúrák vizsgálatára. A vizsgálati módszereken kívül az ionnyalábos írás meghonosításával és továbbfejlesztésével, az alkalmazható rezisztanyagok családjának kiterjesztésével új optoelektronikai vagy orvosi biológiai alkalmazások felé nyitotta meg az utat. Bemutatta, hogy a más módszerekkel nem, vagy csak nagyon bonyolultan kialakítható 3D mikroszerkezetek PBW módszerekkel jól kontrollálható módon létrehozhatók.

Kutatómunkáját széles nemzetközi együttműködések keretében végzi, több laboratóriummal együtt fontos hazai és nemzetközi projektekben vezető vagy résztvevő.

Publikációs tevékenysége, az értekezésben bemutatott eredményeinek alátámasztása és hivatkozottsága is megfelelő.

Eredményeit 4 tézispontban és összesen 13 altézisben foglalta össze.

Az első tézispont a mikro- és nanonyalábok megvalósításával valamint az új 2MV Tandetron iongyorsító kalibrációjával kapcsolatos munkáját foglalják össze. Fontos eredmény az elektromágneses kvadrupol triplett lencsék finomhangolására kidolgozott optimalizációs eljárása. Az eredményeket négy publikációval támasztja alá.

A második tézispont az ionnyaláb analitikai kutatásait, fejlesztéseit foglalja össze. A széntől az uránig terjedő rendszám tartományban analitikai vizsgálatokat lehetővé tevő mérési módszert dolgozott ki. Pásztázott deuteron mikronyaláb használatával gammasugárzás detektálásával a módszer érzékenységét tudta jelentősen növelni. A kidolgozott nyalábparamétereket mérő tesztchip széleskörű alkalmazásra alkalmas. A kisméretű anyalábok alkalmazásának előnyeit mikropillárisok irányeloszlásának meghatározásával demonstrálta. Ezt a tézispontot öt nemzetközi publikációjával igazolja.

A harmadik tézispont összefoglalja tevékenységét a protosugaras írás metodikájának kidolgozásában és az alkalmazható rezisztanyagok fejlesztésében végzett munkáját. Az egyik meghatározó paraméter az ionsugár által a mintába bevitt töltésmennyiség, ennek mérésére dolgozta ki és igazolta a szekunder elektronokra alapozott módszerét. A PBW módszer képességeit nagyfelbontású 3D tesztstruktúrák létrehozásával igazolta. A módszer szempontjából új rezisztanyagot, a CR-39-et vizsgálta és alkalmazási körülményeit és paramétereit határozta meg, optimalizálta. Ez a tézispont hat saját publikációt sorol fel.

A negyedik tézispont a PBW módszer két konkrét, mikrooptikai és mikrofluidikai alkalmazását tartalmazza. Mindkét lehetséges alkalmazásban bizonyította, hogy más módszerrel nem, vagy csak nagy nehézségek árán létrehozható háromdimenziós eszközöket tudott létrehozni. A módszer jelentősen kiterjeszti a funkcionális 3D mikroszerkezetek megvalósítási lehetőségét. A eredményeket nyolc nemzetközi tudományos publikációban tette közzé.

Minden tézispontot, altézist a jelölt saját és új tudományos eredményének ismerem el. Az eredmények nemzetközi tudományos folyóiratokban jól publikáltak, a jelölt a legtöbb cikken első vagy utolsó szerző.

A bemutatott eredmények alapján az értekezést a nyilvános vitára alkalmasnak tartom és sikeres védelem esetén javaslom a jelöltnek az MTA doktora cím megítélését.

Budapest, 2021. június 16.



Battistig Gábor
az MTA doktora