

Opponensi vélemény

Sáfrán György

Vékonyrétegek előállítására és vizsgálata innovatív módszerekkel, különös tekintettel az egy minta elvű mikrokombinatorikára

című MTA doktori értekezéséről

1. Általános szempontok

A benyújtott doktori értekezés a Jelölt azon eredményeit tartalmazza, melyeket módszertani és műszaki fejlesztéseinek köszönhetően ért el különféle vékonyrétegek előállítása, kialakulási mechanizmusai és fizikai-kémiai tulajdonságai problémakörében. A dolgozat 90 oldalban foglalja össze ezeket az eredményeket. Az egyes fejezeteket az ott taglalt eredményekhez kötődő tézispontok, illetve az oda vonatkozó Irodalomjegyzék zárja le. A rövid bevezetésben kutatási tevékenységének motivációját fogalmazza meg először általánosan, majd a konkrét munkákra vonatkozóan. Az eredményeket az 1.-3. fejezetek tartalmazzák. A dolgozatot a két szabadalmi okiratot, valamint a felhasznált műszerarzenál felsorolását tartalmazó függelék zárja. A téziseket a téziszüzet is tartalmazza.

A dolgozat összeállítása kiváló, az ábrák megfelelően támasztják alá a szöveges mondanivalót. A nyelvi megformálás igen jó, a szöveg –olykor igen nehéz szakmai mondanivalója ellenére– könnyen értelmezhető. Elűtés legfeljebb csak mutatóban található a szövegben, és az egyéb hibák sem jelentősek. A dolgozat olvasásában néha nehézséget okoz az, hogy az ábraszövegek pár helyen az oldaltörés miatt távol kerültek az ábrától (pl. 4.o. 1.2 ábra, 36.o. 2.12 ábra, 50.o. 3.4 ábra, 81.o. 3.21 ábra). Előfordul hibás ábra hivatkozás is (pl. 34.o. 9a ábra), ami persze semmit nem von le a munka értékéből.

2. Áttekintő szakmai értékelés

A dolgozat a vékonyrétegfizika témakörén belül is igen széles területet ölel fel, melyek metszete a vékonyréteggutatás és az ezt segítő kutatástechnológiai fejlesztés. A paletta az új műszaki megoldásoktól a különféle kísérleti módszerekig terjedő metodikai együtttest foglal magába. Az innováció mellett a vizsgált témakör kvantitatív alátámasztása is megtörténik, ami a munka kifejezett érdemei közé tartozik. A választott módszerek relevánsak, a kitűzött problémák tudományos megközelítésére alkalmasak és alkalmazásuk eredményes. Kiemelendő, hogy az alkalmazott kísérleti módszerek meglehetősen speciális, a hétköznapi kísérleti gyakorlathoz képest egyedi eszközökre épülnek, ugyanakkor a már-már rutinszerű módszerek között is találunk olyat, aminek a kiértékelés szempontjából igen megnehezíti a kutató dolgát. Összességében a dolgozat érdekéknél könyvelhető el mind az érintett problémák, az alkalmazott módszerek, valamint a különféle, a kutatást segítő technológiai fejlesztések sokszínűsége.

A tézisek 18 közleményre épülnek, melyek közül kettő szabadalmi okirat. A 18 közleményből a Jelölt 11-nek első szerzője. A közlemények a tézisek állításainak megalapozására alkalmasak.

A közlemények megjelenési helye az adott terület szakirodalmát tekintve releváns, a téziseket megalapozó munkák között 5 konferencia cikk található. Teljes munkásságát illetően az MTMT adatbázisa szerint 127 lektorált folyóiratban megjelent közleménye van, melyekre összesen 1542 hivatkozást kapott. Független hivatkozásaiból számolt h-indexe 23.

A szakterület szakirodalmának alapos feldolgozását a Jelölt láthatóan elvégezte, és a nem saját hivatkozások adatait is bőségesen felhasználta a kapott eredmények elemzéséhez.

3. A doktori mű elemzése fő fejezetek és téziscsoportok szerint

1. Új módszerek és műszaki megoldások vékonyrétegek hatékony előállítására és TEM vizsgálatára

A munka első fejezete tartalmazza azokat a műszaki megoldásokat, melyek használatával a Jelölt a dolgozatban foglalt tudományos eredményeket elérte. Az anyagtudományban a minták előkészítése igen kritikus. Fokozottan igaz ez a transzmissziós elektronmikroszkópos (TEM) vizsgálatokhoz készülő mintákra. Az 1.1 tézispont különlegesen kritikus, törekeny minták síkvékonyítására (plan-view) kidolgozott mintaelőkészítő módszert ír le, amit továbbfejleszt úgy, hogy egy lépésben két minta előkészítése is lehetővé válik. Az 1.2 tézispontban egy szolgálati találmányt mutat be, amely egy olyan mintatartó, amely a TEM-lamellák fókuszált ionsugaras megmunkálásában (FIB) segít. A félhold alakú, 3mm-es mikrostélyok megfogása, rögzítése nem egyszerű. Találmányát a FIB-ek Magyarországi megjelenésének lelegelején fejlesztette ki és szabadalmaztatta. Manapság több gyártó alkalmaz hasonló eljárást a mintatartók vákuumkamrában történő rögzítéséhez.

Kérdés: Tudomása szerint használja-e valamely nagy gyártó a javasolt megoldást?

Az 1.3 fejezetben leírtak szintén szabadalmi oltalom alá tartoznak. A mintakészítő berendezés, illetve a javasolt ún. mikrokombinatorikus módszer felhasználásával fémek esetében két, gáz felhasználásával több összetevős minta készíthető, a minta szélességében kontrolláltan változó összetétellel. A berendezés anyagtudományi vizsgálatokhoz (SEM, TEM, optikai vizsgálatok stb.) használható, különösen nemegyensúlyi rendszerek előállítására alkalmas. Használatával lehetőség nyílik két, vagy többalkotós vékonyrétegek összetételfüggő tulajdonságainak vizsgálatára.

2. Wolfram vékonyréteg szupravezető fázisátmenet részecske-detektorok fejlesztése

A második fejezetben egy részecske-detektor-fejlesztést ír le, melyben ösztöndíjasként tevékenyen részt vett. Gyengén kölcsönható tömeggel bíró részecskék (WIMP) kimutatására szolgáló szupravezető W-kaloriméter detektor fejlesztésében vett részt.

2.1 tézis: Elektronmikroszkópos és mérnöki ismeretekre is szükség volt a munka elvégzéséhez. A termokaloriméter elvén működő wolfram vékonyréteg detektorok fejlesztési munkái során olyan W réteget fejlesztett, amely biztonsággal szupravezető állapotba vihető. Ehhez TEM-mel vizsgálta a W rétegek növekedési mechanizmusát és az egyes adalékok, szennyezők hatását a szerkezeti, morfológiai, valamint szupravezető tulajdonságokra. Emellett kriosztátban végzett

szupravezető fázisátmenet tesztmérésekben meghatározta a zafír hordozóra készített W vékonyrétegek szupravezető állapotba való átmenetének elektromos ellenállás görbéjét

A TEM vizsgálatok eredménye megmutatta, hogy kristályhibák, szemcsehatárok ill. egy esetleges második fázis jelenléte szükséges ahhoz, hogy végbe menjen a szupravezető fázisátalakulás, ezért szennyezőt, 10-8 mbar parciális nyomású CO₂-t eresztett a gáztérbe a rétegnövekedés közben, mely adalékolással biztonsággal létre tudták hozni a szupravezető fázisátmenetet a kívánt körülmények között.

Kérdés: A dolgozatban a β -W-ot említi, mint olyan fázist, amelynek létrejötte nagyban hozzájárul a túlhűtés megakadályozásában. Vizsgálták-e ennek a fázisnak a jelenlétét a legjobbnak bizonyult esetben, azaz a zafír abszorberre CO₂- adalékolással növesztett szupravezető W-rétegekben? Lehet-e egyáltalán közvetlen képi bizonyítékot szerezni (pl. TEM-el) a fázis jelenlétéről?

2.2. tézis: A W rétegek szupravezető fázisátmenetének mérésére kidolgozott műszaki megoldásával elsőként készített új, Ti réteg szupravezető kapcsolót, valamint egy olyan áramköri megoldást is javasolt és alkalmazott, melyben ezen kapcsolók alkalmazásával egyetlen SQUID-el, több sorba kapcsolt vékonyréteg minta fázisátmenetét lehet megmérni anélkül, hogy a 8mK-re hűtött kriosztátot ki kellene nyitni.

2.3 tézis: A WIMP kimutatására készült detektor fejlesztési tapasztalatait röntgenszállagászatban használható helyérzékeny W-vékonyréteg szupravezető fázisátmenet (SPT) röntgenfoton detektort fejlesztett. TEM vizsgálatokat végzett annak megállapítására, hogy kiválassza a megfelelő detektor felépítést, ami a legalkalmasabb a fonon gyűjtőfelület növelésére anélkül, hogy növelné a termométer hőkapacitását. A TEM vizsgálatok és a lágy rtg. foton kölcsönhatás mérési eredményeik alapján konstruált olyan kerék alakú W/Al kettősréteg kollektorral növelt gyűjtőfelületű detektor- geometriát, amelyben a W-termométer összfelülete 6 mm². Arra is rávilágított, hogy az SPT W-termométernél, a hatékonyabb detektálás érdekében, szupravezető Al, ill. W/Al diffúziós kettősréteg alkalmazásával megnövelhető a Rtg. fotonok gyűjtőfelülete anélkül, hogy megnövelé a szenzor méretét, ezáltal a hőkapacitását.

Kérdés: A 39. oldalon szereplő 2.9 ábra, illetve az abból levont következtetések kizárólag a dolgozatban leírtak alapján nehezen értelmezhetők, a megértéshez szükséges a fejezet [39,40] hivatkozásainak áttanulmányozása. Ezért kérem a doktori műben leírtaknál részletesebben mutassa be a vonatkozó mérés menetét és a kapott eredményeket.

3. Két- és háromalkotós vékonyrétegek összetételüggő tulajdonságainak átfogó vizsgálata egyminta elvű mikrokombinatorikával

A harmadik fejezetben bemutatja az általa analitikai spektroszkópai technikákra kidolgozott és szabadalmaztatott egyminta elvű mikrokombinatorikus vékonyréteg-vizsgálati módszert, valamint annak két alkalmazását. A módszer során olyan vékonyréteget állít elő, melyben a minta összetétele annak hosszában előre meghatározott módon változzék. A mintakészítés DC magnetronos porlasztó berendezésben történik, a változó összetételt egy, a vákumrendszerbe épített finommechanikai eszköz, valamint a porlasztó források teljesítményének vezérlésével oldja meg. Ezzel, pl. egy kétalkotós rendszer esetében, a hordozó felületén akár a teljes

összetéltartományban képes akár állandó koncentrációgradiensű vékonyréteget létrehozni. A módszer lehetőséget nyújt arra, hogy egyetlen vékonyréteg minta segítségével akár a rendszer teljes fázisdiagramját megkaphassuk. A kifejlesztett módszer hasznát két, valamint háromalkotós rendszerek vizsgálatának bemutatásával demonstrálta.

3.1 tézis: Az Al/Mn kétalkotós rendszert vizsgálta az ún. μ -kombinatorikus módszerrel. A vizsgálat elsődleges a keménymágneses MnAl L_{10} fázis előállítási körülményeinek meghatározása volt, emellett leírta a Mn-Al kétalkotós vékonyréteg rendszer szerkezeti-morfológiai tulajdonságait a teljes összetéltartományban. Analitikai-elektronmikroszkópos vizsgálatai során sikerült meghatározni a nagy koercitivitású MnAl L_{10} fázis előállítási paramétereit (500 °C / 0.5h, 40/60 at% Mn/Al), amely alkalmas lehet merőleges mágnesezésű mágneses adathordozó média céljára.

Kérdés: A μ -kombinatorikus módszer egyik fő előnyét abban látja, hogy használatával azonosíthatók lehetnek a vékonyrétegben létrejövő nemegyensúlyi metastabil és akár instabil fázisok is. Az Al-Mn kétalkotós rendszer vizsgálatánál utal arra is, hogy a módszerrel nemcsak a szobahőmérsékleten, hanem akár a növesztést követő magas hőmérsékletű hőkezelés során kialakuló fázisok is tanulmányozhatók. A mintakészítés során a távolság függvényében lineáris elemeloszlású koncentrációprofilot hozott létre, amely függést felhasznált a keresett fct-fázis kiindulási összetételének meghatározásához. Ez a megfeleltetés véleményem szerint csak akkor tehető meg, amennyiben a hőkezelés során nem történik laterális, a minta síkjával párhuzamos anyagtranszport, ennek ugyanis sem termodinamikai, sem kinetikai gátja nincs a dolgozatban szereplő rendszerekben. Kérem fejtse ki ezzel kapcsolatos álláspontját!

3.2 tézis: Al/Mg rendszerben μ -kombinatorikus módszerrel állított elő mintát Al_xMg_{100-x} összetételben 0-100 at% Mg koncentrációtartományban. Analitikai elektronmikroszkópos vizsgálatokat és nano-indentációs méréseket végzett a mintán, meghatározva ezzel az Al-Mg vékonyrétegrendszer mikroszerkezeti és nanomechanikai tulajdonságait az összetétel függvényében. Megmutatta, hogy ebben a rendszerben kétféle deformációs mechanizmus különböztethető meg. Kis Mg-koncentráció esetén az aprószemcsés polikristályos anyagokra jellemző deformáció, míg 15 at% Mg fölött az amorf, üvegszerű anyagokra jellemző deformáció működik.

3.3.1 tézis: a-Si/a-Ge magnetronos porlasztással 8nm vastagságú vékonyrétegben állított elő a teljes összetéltartományban változó összetételű vékonyréteget. Analitikai elektronmikroszkópos vizsgálatok során megállapította, hogy a minta a teljes összetéltartományban amorf, de az atomszomszédok távolságának változása eltér a Vegard szabálytól. Az eltérést a Si szelektív oxidációjával magyarázott, amit kísérleti tényekkel is alátámasztott.

3.3.2 tézis: Hidrogénezett a-Si/a-Ge rendszer optikai tulajdonságait vizsgálta ellipszometriás mérésekkel. A mintakészítés során 4 különböző mértékben hidrogénezett a-SiGe:H mintát készített μ -kombinatorikus módszerrel változtatva a hidrogén részarányát a DC porlasztás során alkalmazott argon-hidrogén porlasztógázban. A mintákban a helyi SiGe koncentráció és a minta mentén mért távolság egyértelműen megfeleltethető volt egymásnak, emellett a hidrogéntartalom szintén egyértelmű összefüggést mutatott a Si/Ge aránnyal. Az optikai vizsgálatok során elért eredményei kivételesek, az irodalomban elsőként sikerült összeállítani a hidrogénezett a-SiGe vékonyrétegrendszer optikai tulajdonságainak ilyen komplett adatbázisát.

3.4 tézis: Elektronikus alkalmazások szempontjából fontos Hf-oxidnitrid rendszert vizsgált ellipszometriával, a réteg O/O+N aránytól függő törésmutatóját határozta meg. Az eddig két komponensre alkalmazott μ -kombinatorikus módszert kiterjesztette háromkomponensű fém-oxidnitridek vizsgálatára is. A minták gyártása során perisztaltikus szivattyúval kapcsolt önszabályozó gázadagoló rendszert fejlesztett ki 10^{-4} bar alatti folyamatosan változó gáznyomás megvalósítására, amit Hf-oxidnitrid minták reaktív RF porlasztása során alkalmazott.

4. Összefoglalás

Sáfrán György hosszú ideje a vékonyréteg kutatások résztvevője, az elektronmikroszkópiához, mintakészítéshez kapcsolódó műszaki fejlesztések művelője, irányítója. A területen komoly elismertséget szerzett és munkáit jól hivatkozzák. Ezekből a munkákból egy elegáns, igen jól olvasható dolgozatot írt. Mindezek alapján az MTA doktora fokozatra alkalmasnak találom, a nyilvános védés kitűzését javaslom, és a fokozat odaítélését melegen támogatom.

Debrecen, 2022 február 21.



Cserhāti Csaba