

Válasz Dr. Tóth Zsolt

„Szilícium alapú nanokristályos szerkezetek minősítése
spektroszkópai ellipszometriával”

című doktori (Ph.D.) értekezésem bírálata

Köszönöm Tóth Zsoltnak az értekezésem alapos átolvasását és hasznos észrevételeit.

A bírálóban feltett kérdéseire, megjegyzéseire (amelyekre itt dőlt betűvel utalok) a következőket válaszolom:

1. 20. oldal: 2.20-as képletben ε_0 mit jelöl? Hogyan oldaná fel azt a dolgozatban megjelenő nyelvi kettősséget, hogy a polarizáció szó jelenti a fény polarizációját és az anyagban a dipólusok által keltett dipólmomentumot is?

A 2.20 egyenletben szereplő ε_0 elgépelés eredménye. Helyesen ε_0 , vagyis vákuumbeli permittivitás. Amikor a fény polarizációjáról beszélünk, abban a szövegkörnyezetben mint állapot, beszélünk a polarizációról. Míg egy anyagban egységnyi térfogatban felösszegzett dipólmomentumok esetén a polarizáció egy anyagi jellemző. Így a szövegkörnyezet segít megkülönböztetni a kettőt egymástól.

2. 31. oldal: a point-by-point módszer leírásánál hiányolom a módszer alkalmazhatóságának mélyebb diszkusszióját. Milyen pontossággal kell rögzíteni a nem illesztett paramétereket, hogy a point-by-point módszer alkalmazható legyen?

A point-by-point módszer egy eszköz arra, hogy az optikai modellben egy tetszőlegesen megválasztott réteg/komponens törésmutatójára és extinkciós együtthatójára végezzünk illesztést külön-külön minden egyes hullámhosszon. Gyakran egy beesési szögön mért spektrumokkal dolgozunk, így az ott kimért két érték (ψ és Δ) egyértelműen meghatározza a két keresett változót. Természetesen az illesztés eredményezhet lokális minimumokat, illetve nem garantált, hogy létezik valódi megoldása az illesztésnek. A módszer akkor alkalmazható legjobban, ha a réteg vastagsága egy olyan hullámhossz tartományban végzett illesztésből van meghatározva, amelyben a diszperzió valamilyen egyszerű formulával (pl. Cauchy) megadható, vagy a vastagság más módon (pl. egyéb referencia mérési módszerrel) meghatározásra kerül. Megjegyzem, a vastagságban elkövetett pontatlanságra kevésbé

érzékeny a származtatott törésmutató, mint arra, ha esetleg a valódi minta mélységben inhomogén. A kapott eredmény hitelességének megítélésében segít, hogy az egyes anyag típusok (pl. félvezető, fém, dielektrikum) dielektromos függvénye bizonyos sajátosságokat mutat, valamint meg kell feleljen néhány kritériumnak (pl Kramers-Kronig konzisztencia vagy $k > 0$ feltétel). Én a porózus szerkezet modellezésében használtam fel a point-by-point módszert. Ekkor feltételeztem, hogy a c-Si és üreg keverékéből képzett modell jó közelítéssel leírja a szerkezetet (ebből a közelítő modellből becslést tudtam adni a rétegvastagságra is). Így az ebből kapott eredményeket felhasználva point-by-point módszerrel is megvizsgáltam, milyen dielektromos függvény adná vissza a legjobb illesztést.

3. 41. oldal: A 4. fejezet összegzésben szó esik a paraméterek csatolásáról, amelyről korábban nem volt említés. Itt érdemes lett volna a 7.6 fejezetre előreutalni. A fizikai modell értelmének megsértése nélkül mely paramétereket szabad csatolni és melyeket nem?

Azokat a paramétereket szabad csatolni, amelyekről tudjuk vagy feltételezzük, hogy egymáshoz képest arányosan változnak. Ezt az arányszámot a csatolási állandó adja meg. Elméletileg elképzelhető olyan csatolás is, amelyben a két paraméter egymáshoz képest valamilyen függvény szerint változik, de a jelenlegi szoftvereink egyelőre még csak az arányos csatolást támogatják.

4. 49. oldal: Ahogy a szerző a téziszfűzetben is kiemeli: "A félvezetőiparban használt legismertebb és legelterjedtebb félvezető anyag a szilícium. Tulajdonságai közül kiemelendő, hogy szobalevegőn stabil oxid (azaz szigetelő) réteg képződik a felületén." Miért történik az illesztés csak c-Si és üreg komponensre? Miért nem kell figyelembe venni a SiO₂ komponenst? A 3. táblázatban a PS160 minta esetén a 3. réteg vastagságában nagy a hiba. Másrészt a szerző a 3. réteg vastagságát azonosítja a felületi érdességgel, amelynek rétegvastagságát így 1/2-es faktossal súlyozva veszi figyelembe. Ez nem helyes, ugyanis a c-Si %-os arányában nincs nagy eltérés a 2. és a 3. réteg között. Csökken-e a 2. és a 3. réteg esetében a hiba, ha a 3. réteget a 2. réteg felületi érdesség rétegeként tekintjük a szokásos értelemben (50% void - 50% réteg) ?

A szilíciumdioxid valóban jelen van minden egyes általam mért mintában, hiszen azokat a szabad levegőn tároljuk, így óhatatlanul képződik a pórusok falain egy 1-3 nm vastag oxidréteg. Ennek kimutatása az érzékenységi határon van egyrészt a kis anyagmennyiség

miatt, másrészt az üreg és a SiO₂ dielektromos függvényei közötti kis különbség miatt, ami erős korrelációhoz vezet, ha a SiO₂ is szerepel EMA komponensként a modellben.

A háromréteges EMA modell teljes vastagságának meghatározása valóban úgy helyes, ha a három rétegre kapott vastagságokat felösszegezzük. Az erre felírt képletet hibásan adtam meg, viszont a táblázatban már helyesen végeztem el a számításokat. Az egyenlet helyesen:

$$d_{\text{teljes}} = d_{1.\text{réteg}} + d_{2.\text{réteg}} + d_{3.\text{réteg}} \quad (4.1)$$

Elvégezve a bíráló által javasolt módosítást az optikai modellen, a második réteg vastagságára kapott hibák csökkentek; a felületi érdesség vastagságára kapott hibák kicsik; a teljes vastagságra (ahol most a felületi érdesség ½ részben van jelen) kapott értékek eltérése a korábbi modellel számolttól 1-2 %-on belül maradt:

Minta neve	1. Réteg		2. Réteg		Felületi érdesség	Teljes vastagság	Porozitás
	d[nm]	c-Si[%]	d[nm]	c-Si[%]	d[nm]	d[nm]	[%]
PS130	13,3 ± 0,3	62	100 ± 0,4 (96,5 ± 0,9)	30	3,5 ± 0,3	115 ± 1 (116 ± 2)	66
PS160	12,5 ± 0,3	64	107,1 ± 0,4 (105,1 ± 8,6)	32	0 ± 0,3	120 ± 1 (120 ± 12)	65
PS200	14,8 ± 0,8	49	135,2 ± 1 (133,7 ± 1,5)	31	2,2 ± 0,4	151 ± 2 (152 ± 2)	67
PS260	17,8 ± 1,1	43	131,1 ± 1,2 (128,5 ± 1,5)	29	4,6 ± 0,4	151 ± 2 (153 ± 2)	69
PS310	17,8 ± 0,5	40	113,1 ± 0,5 (95,2 ± 1,2)	23	2,7 ± 0,7	132 ± 1 (133 ± 2)	75
PS390	38,4 ± 2,1	29	73,4 ± 0,3 (41,1 ± 2,6)	24	0,5 ± 0,5	112 ± 3 (114 ± 4)	74

Táblázat: A porózus szilícium mintákra illesztett 2 EMA réteget és egy felületi érdességet tartalmazó optikai modell paraméterei. d az adott réteg vastagságát, c-Si az egykristályos szilícium komponens térfogatszázalékát jelöli az adott rétegben. Zárójelben a dolgozatban használt 3 EMA rétegű optikai modell eredményei vannak feltüntetve a hozzájuk tartozó hibák összehasonlítása végett.

5. 50-52. oldalak, 5.5 alfejezet. Meglepett, hogy nem az előző alfejezet 2. rétegére hanem a teljes rétegre alkalmazta a szerző a point by point és a GCP modelleket. A 2., középső, már

meghatározott porozitású és vastagságú rétegben a pórusgradiens valószínűleg kisebb, mint a teljes rétegben. A teljes rétegbeli nagyobb gradiens bizonyára nagyobb hibát okoz a point by point és a GCP komponenset tartalmazó optikai modellek kiértékelése során. A 4. táblázatában mire vonatkozik a „c-Si + 70% üreg” címmel ellátott oszlop?

A point-by-point illetve GCP modellt az egyréteges modellben alkalmaztam, követve azt a logikát, hogy az egyszerűbb modellek felől haladjunk a bonyolultabbak felé. Ha a 3 réteges modell középső rétegére alkalmazom, az számos új kérdést vet fel. Legfőképp azt, hogy az első és harmadik réteg jelenléte és az abban használt referenciaadatokból adódó hiba miképp befolyásolja a középső réteg optikai tulajdonságát illetve egyszerűbb modellben meghatározott vastagságát.

Összehasonlításképpen egy 30%-ban c-Si fázis és 70%-ban üreg EMA keverékének szimulált dielektromos függvényére is elvégeztem az egyréteges GCI modell illesztését. Ennek az eredményei láthatóak a 4. táblázat „c-Si + 70% üreg” címmel ellátott oszlopában. Ezt valóban elmulasztottam leírni.

6. *68. oldal 7.3 ábra és a hozzá tartozó szöveg: Az NC2 és NC3 minták esetén nem látszik, hogy hogyan lehetett félérték-szélességeket meghatározni a röntgendiffrakciós eredményeket mutató grafikonról. Kérem mutassa be, a Debye-Scherrer-formulát alkalmazva hogyan sikerült a szemcseméretre is következtetni ezekből a röntgendiffrakciós mérésekből?*

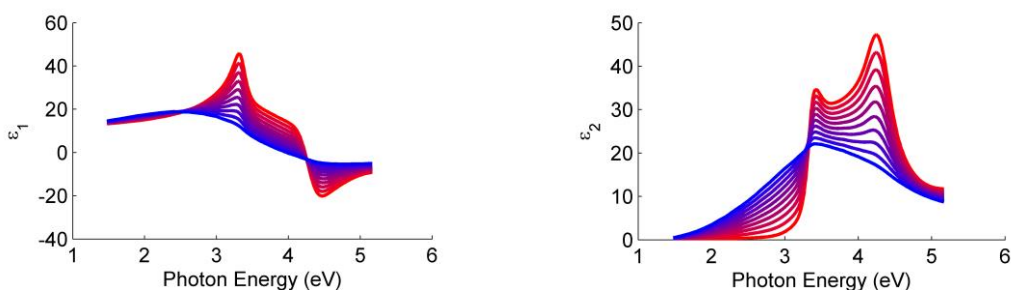
A röntgendiffrakciós mérések és azok kiértékelései a CNR-IMM partner kutatóintézetben készültek. A röntgendiffrakciós mérések kiértékelése nem képezte a dolgozat tárgyát. Itt elfogadtam és feltételeztem az együttműködő partnerünk kompetenciáját.

7. *69. oldal 7.4.1 fejezet 7. sor: Miért volt szükséges a 2. Rétegnek nevezett SiO₂ réteg esetén EMA-réteg felépítésére? A 73. oldal 8. táblázatában mutatott eredmények sem támasztják alá ennek szükségességét. Sőt, inkább kerülni kellett volna a negatív térfogatszázalékok előfordulását. Másrészt az MDF-modellben is csak a SiO₂ referencia adatokat használja ennek a rétegnek az illesztésére. Továbbolvasva a 74. oldalon értelmezést ad a szerző az EMA-modell eredményeire. Ezután elegánsabb lenne a helyes modellt is felállítani és bemutatni.*

A 2. rétegre alkalmazott EMA modell az oxidáció tökéletességét volt hivatott vizsgálni, vagyis hogy található-e valamilyen maradék Si fázis a rétegben. Miután ilyen módon kimutattam, hogy csak elhanyagolható mértékben, a következő lépésben, a továbbfejlesztett, MDF parametrizálást alkalmazó modellben már sztöchiometrikus SiO_2 réteget alkalmaztam a felületen.

8. Kérem fejtsse ki részletesebben, esetleg egy megfelelő grafikonon szemléltesse a 71 oldalon található gondolatot: "Mivel amorf anyagokban a kritikus pontok nem értelmezhetők, ezért az Adachi-féle modellből adódó tiltott sávok nem feleltethetők meg a Brillouin zóna Bragg sávjainak, de figyelembe vehetők akkor, amikor a kovalens kötések által keltett rövid távú rend hatását vizsgáljuk."

Az Adachi-féle MDF modell az egykristályos szilícium különböző elektronsáv-átmeneteinek a leírásából épül fel. Amorf anyagok esetében a hosszú távú rend megszűnése miatt a sávszerkezeti modell relevanciája megkérdőjelezhető, viszont a rövid távú rend fennmaradása hasonló szerkezeti sajátosságokat mutat a dielektromos függvényben. Ennek megfelelően az MDF modell oszcillátor paraméterei alkalmasak rá, hogy a dielektromos függvényben megjelenő szerkezeti változást a teljes amorfizációig kövessük (1. ábra).



1. ábra: c-Si és a-Si referencia törésmutatókból az EMA segítségével számolt valós (ϵ_1 , bal oldali kép) és képzetes (ϵ_2 , jobb oldali kép) dielektromos függvények különböző koncentráció arányok mellett. A piros görbe a 100% c-Si, a kék görbe a 100% a-Si koncentrációarányának felel meg.

9. 76. oldal: Az eltérő nanokristályosságú minták illesztési eljárása során az érzéketlennek tűnő paramétereket más paraméterekhez csatolta a szerző. Azt írja: "A csatolási állandókat a c-Si dielektromos függvényére illesztett Adachi-féle modell eredményeiből származtattam." Lehet-e a másik oldalról megközelíteni a dolgot, azaz van-e értelme a csatolási állandókat az

a-Si dielektromos függvénye alapján meghatározni? A kétfajta megközelítés vajon egyfajta eredményt ad-e az érzékeny paraméterekre?

A csatolási állandók meghatározásakor az egyes kritikus pontokat leíró oszcillátor paraméterek változásainak arányát vizsgálom a nanokristályosság függvényében. Ezek az elnyelési csúcsok a kristályosság növekedésével válnak egyre markánsabbá, azaz a csatolási állandókat vélhetően ebben a tartományban lehet nagyobb érzékenységgel megállapítani. Az amorf állapothoz közeledve ezen oszcillátor paraméterek nagy része érzéketlenné válik a csúcsok eltűnése miatt, azonban más paraméterek érzékenysége növekszik, ezért ebből a szempontból az amorf irányból való megközelítésnek is lehet relevanciája. Fontos még megjegyezni, hogy az amorf állapothoz közeledve az érzékeny paraméterek száma csökken.

Még egyszer köszönöm Tóth Zsoltnak az értekezésem alapos átolvasását és hasznos észrevételeit.

Budapest, 2014. 11. 06.

Agócs Emil