

Mikroelektronika na Slovensku, vľ naprašovanie-senzorika

**Čriepky z výskumu v oddelení Senzoriky a mikrosystémovej  
techniky na Katedre mikroelektroniky FEI STU v Bratislave,  
z rokov 1974 až 2021**

VLADIMÍR TVAROŽEK, IVAN NOVOTNÝ

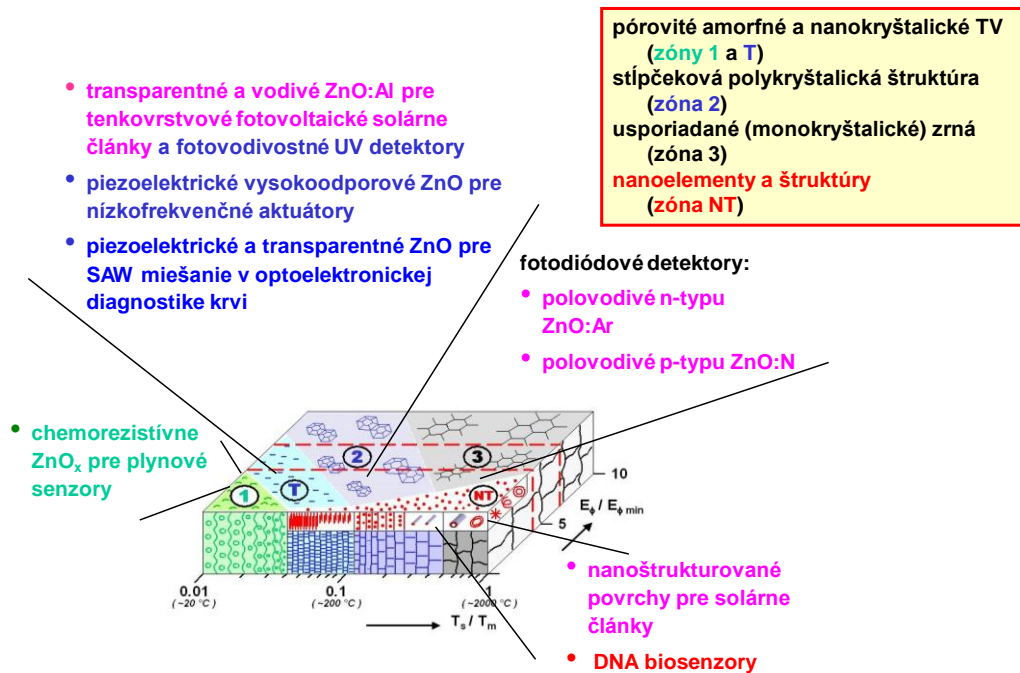
**Fragments of the research in the Laboratory of Sensorics and Microsystem  
Technology in Department of Microelectronics, the Faculty of Electrical  
Engineering and Informatics, Slovak Technical University in Bratislava, in  
years of 1974 - 2021**

Abstract

*In this paper several fragments of the research in the Laboratory of Sensorics are described. Research activities of the Laboratory S&MST focused on thin film physics and technology but mainly sputtering vacuum deposition. Different modes and parameters of sputtering provided a wide scale of thin-film micro-/nano- structures and interfaces applicable in pressure, temperature, biochemical microsensors as well as in photovoltaic solar cells. A few outputs of R&D are illustrated: (1) special modifications of sputtering of ZnO-based thin films with different crystallic structure/properties, (2) thin-film Pt temperature microsensors, (3) electrochemical microsensors with high sensitivity based on the interdigitated vertical array of electrodes which enhance redox cycling current, (4) immunosensors formed on supported Bilayer Lipid Membrane (s-BLM) attached to Au thin-film microelectrode substrate. An extensive short and/longterm collaboration with domestic and international institutions contributed to successfulness of R&D projects.*

Prezentované útržkovité spomienky sa týkajú obdobia od premenovania Katedry rádiotechnológie FE STU na Katedru mikroelektroniky v roku 1974, až do roku 2021.

V oddelení Sensoriky a mikrosystémovej techniky (S&MST) sme na počiatku 70-tich rokov konštrukčne uviedli novú vákuovú technológiu depozície tenkých vrstiev - vysokofrekvenčné (vf) naprašovanie - ktorú sme naďalej v ďalších rokoch vývojovo a výskumne rozvíjali. Táto technológia umožnila deponovať tenké vrstvy daného materiálu s rôznou kryštalickou štruktúrou a prísadami, a podstatne ovplyvňovať ich fyzikálno-chemické vlastnosti aj potenciálne aplikácie, Obr. 1. Z veľkého počtu vedecko-výskumných a aplikačných projektov riešených v oddelení S&MST uvedieme len najvýznamnejšie:



**Obr. 1** Kryštalická štruktúra naprašovaných tenkých vrstiev oxidov zinku (prípadne s rôznymi prísadami) v závislosti od teploty podložky a hustoty energie pôsobiacej na rastúcu vrstvu, ako aj ich potenciálne aplikácie.

Konštrukčné návrhy vf naprašovacích zariadení a výskum prípravy odporových tantalových tenkých vrstiev vhodných pre hybridné integrované obvody v rámci spolupráce s Teslou Lanškroun, VÚVET Praha a s Teslou Elektroakustika Bratislava (1971 - 1975).

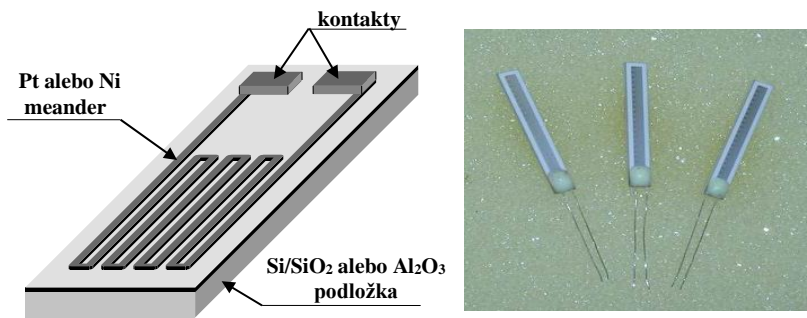
Metódou vf naprašovania sme originálnym postupom vytvorili epitaxné a amorfné Si tenké vrstvy na zažiarovaných podložkách<sup>1)</sup>.

Výskumom a vývojom Schottkyho vf a výkonových diód na báze technológie vf naprašovania<sup>2)</sup> sme aktívne prispeli k zavedeniu ich výroby v Tesle Piešťany (1978-84). Pre tento účel sme vyvinuli, na tú dobu unikátnu technológiu prípravy rozhrania kov-polovodič a v istom období sme sa v našich laboratórnych podmienkach podieľali na výrobe Schottkyho diód pre Teslu. Fungovalo to tak, že skoro ráno prišiel kuriér z Piešťan s prepravkou kremíkových substrátov a vo večerných hodinách odchádzal späť, aby ešte stihol odovzdať podložky s naprašovanou vrstvou Pt alebo W do výrobného procesu na nočnú zmenu.

Vyriešili sme technológiu naprašovania vrstiev oxidov india a cínu<sup>3),4)</sup> s vysokou elektrickou vodivosťou a optickou transparentnosťou, čím sme sa významne podieľali na realizácii a zavedení tejto technológie vo výrobe displejov pre špeciálnu vojenskú techniku v Tesle Vrchlabí (1984 - 1985). Okrem toho sme získali skúsenosti pri riešení utajených projektov v tej dobe. Pre ilustráciu jeden príklad utajovaného financovania mimo klasického rozpočtu: zodpovedný

riešiteľ projektu s oddelenia S&MST si v Prahe na najvyššom poschodí v trezore Štátnej plánovacej komisie vyzdvihol šek na sumu so šiestimi nulami a električkou išiel do ČSOB banky, ktorá jediná obchodovala so zahraničím, kde sa osobne zúčastnil prevodu uvedenej sumy na devízové konto FEI STU. Získané financie nám umožnili nákup náhradných dielov a súčiastok a predĺžiť tak "aktívnu životnosť" vf naprašovacieho zariadenia na veľa (40) rokov. Pre pracovníkov to ale znamenalo zabezpečiť nepretržitú prevádzku (aj v noci), pretože 1 x za týždeň prišiel kuriér s Tesly Vrchlábí so špeciálnym kufríkom pre odvoz "polotovarov".

Vyvinuli sme technológiu naprašovania pre novú generáciu tenkovrstvových senzorov tlaku a teploty<sup>5),6)</sup> (Obr. 2) aplikovaných v leteckej technike prostredníctvom n.p. MESIT Uherské



**Obr. 2** Tenkovrstvové Pt senzory teploty vyrobené v laboratóriu S&MST s parametrami odpovedajúcimi norme IEC 751 (rozmery 3x15 mm).

Hradište. Na Morave sme sa osobne spoznali a spriatelili s pracovníkmi, ktorí mali v sebe tzv. "baťovský" prístup pri riešení problémov - usilovnosť, zodpovednosť, a najmä kreativitu (Dipl.Tech. Peter Bureš, Ing. Zdeněk Řezníček a ďalší). Jediným problémom týchto praco-vných stretnutí (dnes by sme ich

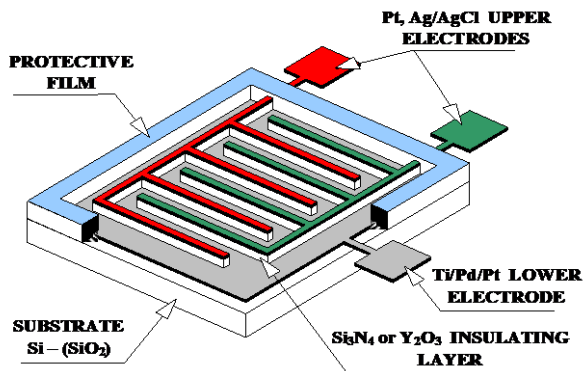
nazvali Team building) bolo, že sa končili návštevou pivníc vo vinohradoch, kde bola ochutnávka rôznych druhov vína a s rôznou dobou zretia. Pri odchode potom teplý vzduch a gravitácia často pôsobili negatívne.

Pri realizácii našich výsledkov v praxi sme si uvedomili dôležitosť mať pre projekt partnerov pre klasicky známe "3V" etapy: Výskum - Vývoj - Výroba.

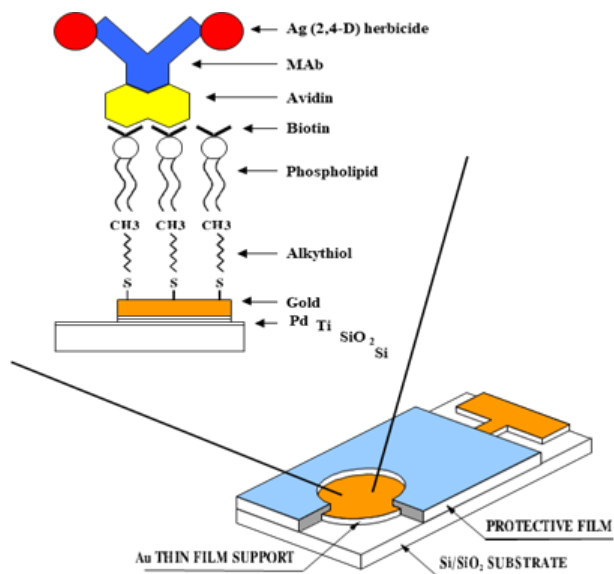
Stretnutie s prof. H.Ti Tienom a prof. Angelikou Ottovou viedlo k založeniu medzinárodného Centra pre hraničné vedy CIS (Center for Interface Sciences), ktoré bolo podporované US AID Grantom<sup>7)</sup>. Partneri boli: Michigan State University (prof. H.Ti Tien), Lekárska fakulta Univerzity Karlovej a Fakultná nemocnica Plzeň (prof. Jozef Racek), Matematicko-fyzikálna fakulta Komenského Univerzity (prof. Tibor Hianik), Chemickotechnologická fakulta STU (prof. Dušan Bustín), Fakulta elektrotechniky a informatiky STU (prof. Vladimír Tvarožek). Centrum CIS bolo hlavným impulzom pre zameranie vedecko-výskumnej činnosti oddelenia S&MST na oblasť biochemických mikro-/nano-senzorov<sup>8)</sup>. Spomenieme jednu úsmevnú príhodu: prof. V. Tvarožek mal spolu s prof. H.Ti Tienom príspevok na SPIE konferencii v San Diegu, California, v r.1996. Pri ceste domov (po prednáškach na Michiganskej a Chicagskej Univerzite) mu umožnili navštíviť obrovský medzinárodný veľtrh mikro-/nano-elektronických zariadení. Organizátori nenašli v počítači štát SR (ani ČR) a po dohode s nimi, že Slovensko patrilo k Rakúsko-Uhorskej monarchii vytlačili peknú ozdobnú menovku s adresou "Slovak Technical University, AUSTRIA".

Pre potenciálnu aplikáciu našich výsledkov v medicíne, monitorovaní životného prostredia a potravinárstve sa využívali: (1) naprašované interdigitálne súbory platina/zlato mikroelektrod s modulom 3 až 100 mikrometrov<sup>9),10),11)</sup>, Obr. 3: (2) dvojvrstvové lipidické membrány BLM (obal buniek hrúbky  $\approx$  6 nanometrov), ktoré boli vytvorené na tenkovrstvových mikroelektrodach<sup>12),13),14)</sup>, Obr. 4: (3) senzorické tenké/ultratenké vrstvové štruktúry (polykrystalický stĺpikový oxid zinku<sup>15)</sup>, zlaté nanoostrovčekové polia<sup>16)</sup>) vytvárané naprašovaním bez použitia masiek a fotolitografie.

Vyvinuli sme špeciálnu technológiu pokrývanie 3D vzoriek sekvenčným (cyklickým) naprašovaním pozostávajúcim z dynamického (layer-by-layer) spôsobu depozície. Špeciálne vlastnosti sekvenčného rozprašovania, ako malá rýchlosť depozície a izotropná depozícia pri tlaku pracovného plynu väčšom ako 1 Pa - boli využité v dobre kontrolovateľnom pokrývaní nanokuželov (gálium-fosfid) poľom nanoostrovčekov striebra<sup>17)</sup>, Obr. 5.



**Obr. 3** Elektrochemický mikrosenzor s vertikálnym usporiadaním elektród (ich vzájomná separácia je menšia ako 1 mikrometer, umožňuje podstatné 100-násobné zvýšenie citlivosti), ktorý bol využitý pre stopovú detekciu železa v ultra-čistom spektrálnom uhlíku (spolupráca s Chemickotechnologickou fakultou STU (prof. Dušan Bustín a kolektív)).



**Obr. 4** Štruktúra immunosenzora vytvoreného na zlatej mikroelektrode pomocou lipidickej membrány (spolupráca s prof. Tiborom Hianikom a kolektívom, Matematicko-fyzikálna fakulta Komenského Univerzity).

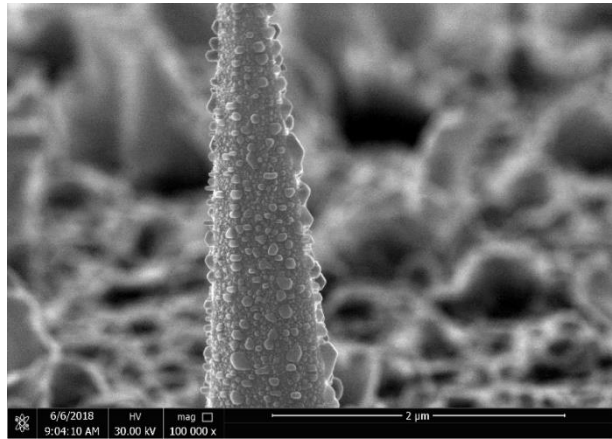
Oddelenie S&MST sa veľkou mierou zapájalo do medzinárodnej vedecko-výskumnej spolupráce v rámci EC projektov a bilaterálnych projektov Slovensko - Česko /Nemecko /Bulharsko /Srbsko /Anglicko. Niektoré bilaterálne projekty boli veľmi úspešné: napríklad študentka Krasimira Shtereva z Univerzity Russe (Bulharsko) na základe štúdia a výskumnej práce pri naprašovaní tenkých vrstiev dotovaného oxidu zinku p-typu<sup>18)</sup> dosiahla unikátne výsledky, obhájila diplomovú a dizertačnú prácu na FEI STU, čo jej dopomohlo k habilitácii za docentku. Medzinárodná spolupráca nám umožnila získanie nových vedecko-výskumných skúsenosti, rozšírenie našich znalosti, ale aj poznatok, že vo vzájomných pracovných vzťahoch je dôležité uzatvárať reálne dohody a dodržiavať ich z obsahového i časového hľadiska, čo na Slovensku nie je vždy samozrejme.

Oddelenie S&MST vďaka za úspešné riešenie projektov aj veľmi dobrým odborným/pracovným, ako aj osobným kontaktom, s vedeckými pracovníkmi Slovenskej akadémie vied v Bratislave, napr. s Ing. Tiborom Lalinským, DrSc., doc. Jozefom Novákom, DrSc. z Elektrotechnického ústavu a ďalšími kolegami. Zvlášť je potrebné oceniť vplyv prof. Štefana Lubyho, DrSc. z Fyzikálneho ústavu, ktorého dlhoročné aj kritické pripomienky a hodnotenia projektov v oblasti tenkých vrstiev pozitívne pôsobili na kvalitu a zameranie výskumnej činnosti oddelenia.

Z viacerých našich aktivít na Slovensku pre spájanie domácich a zahraničných komunit je potrebné vyzdvihnúť spoluorganizovanie NATO Research Workshopu on Biosensors for Direct Monitoring of Environmental Pollutants in Field v Centre SAV Smolenice v r. 1997 (je potrebné pripomenúť, že Slovensko sa stalo členom NATO až v roku 2004 "vďaka" politike premiéra Mečiara). Zišli sa vtedy špičky odborníkov v danej problematike z 12 krajín (USA, Kanada, Anglicko, Taliansko, Nemecko, Švédsko, Španielsko, Portugalsko, Turecko, Grécko,

Česko a Slovensko) aj preto, že pracovisko S&MST bolo medzinárodne známe z riešenia EC projektov.

Celé oddelenie S&MST bolo súčasťou Výskumného centra MŠMT ČR 1M06031 „Materiály pre ochranu životného prostredia“, so zameraním na "Výskum, vývoj a realizácia tenkovrstvových fotovoltaiických solárnych článkov II. generácie". Zodpovedným riešiteľom bol doc. RNDr. Pavol Šutta CSc., z Centra nových technológií Západočeskej Univerzity v Plzni. Ďalšími dôležitými partnermi boli: Ústav makromolekulárnej chémie AV ČR Praha (RNDr. Věra Cimrová CSc.), Solartech s.r.o. Rožnov pod Radhoštěm (Ing. Jozef Řehák) a Deft University of Technology, Lab. of Photovoltaic Materials & Technology (prof. Miro Zeman). Riešenie tejto problematiky v rokoch 2006 až 2012 významne podporilo úroveň pracoviska odborne, personálne aj ekonomicky. Projekt pri konečnom vyhodnotení patril medzi úspešné a vynikajúce v porovnaní s desiatkami ďalších projektov rovnakej kategórie. Ako "perličku" uvádzame, že z administratívnych dôvodov bol zodpovedný riešiteľ za STU prof. Vladimír Tvarožek vedený na Úrade vlády ČR ako "český vedec".



**Obr. 5** GaP nanokúžele pokryté polom nanoostrovčekov striebra (spolupráca s doc. Jozefom Novákom, DrSc. a kolektívom, Elektrotechnický Ústav SAV).

Je potrebné spomenúť výrazný podiel oddelenia S&MST na medzinárodnej spolupráci s TU Ilmenau (Nemecko) trvajúcej viac ako 50 rokov<sup>19</sup>), čo je najdlhšie trvajúca medzinárodná spolupráca v rámci celej STU. K vedecko-výskumnej práci patrí aj humor. Dokladom toho je aj príhoda zo začiatkov spolupráce: na spoločnej večeri prof. Christian Knedlik z TU Ilmenau sa chcel blysnúť znalosťou slovenčiny a predniesol slávnostný prípitok s pohárom vína "Nádražie!" (namiesto "Na zdravie"), čo sa dodnes trauje.

Vedecko-výskumné aktivity oddelenia S&MST potvrdili známy poznatok z riešenia najmä väčších projektov, že je potrebné byť trpezlivý a empatický, pretože riešiteľský tím zložený z viacerých partnerov prechádza niekoľkými štádiami v duchu anglického "4 F": Forming - Fighting - Familiaring - Flowing.

Niekoľko čísiel na záver. V období, ktoré opisujeme, sa na mieste vedúceho katedry (v súčasnosti premenovaná na Ústav elektroniky a fotoniky) vystriedali postupne, prof. Rudolf Harman (1972-1990), doc. Marian Veselý (1990-1993) a prof. Daniel Donoval (1993-2023). V našom oddelení S&MST v tých rokoch úspešne obhájilo diplomovú prácu viac ako 50 študentov, pričom témy diplomových prác priamo súviseli s riešenou problematikou vedecko-výskumných a aplikačných projektov. Doktorandské štúdium ukončilo 11 doktorandov, ktorí významnou mierou prispeli k úspešnému riešeniu projektov základného i aplikovaného výskumu ako i medzinárodných projektov. V „dielni“ oddelenia S&MST v tomto období vzniklo viac ako 150 pôvodných vedeckých článkov publikovaných vo viac ako 30-tich rôznych karentovaných časopisoch s počtom citácií prevyšujúcich číslo 300. Spomenieme ešte 5 vynálezov a viac ako 200 publikovaných príspevkov na vedeckých konferenciách po celom svete.

#### Literatúra

- <sup>1</sup> Harman, R., Tvarožek, V., Vaněk, O., Kempný, M., Liday, J.: R. F. Sputtered Si Films on Sapphire, *Thin Solid Films* 32, (1976), pp. 55-58
- <sup>2</sup> Donoval, D., Harman, R., Tvarožek, V., Novotný, I., Janiš, I.: Schottkyho diódy so silicidmi rôznych kovov, *Zb. 3. čs. konf. o mikroelektronike, Bratislava, (1983)*, pp. 132-135

- <sup>3</sup> Tvarožek, V., Novotný, I., Harman, R., Kováč, J.: Rf reactive sputtering of ITO films, *Vacuum* 36, (1986), 7-9, pp. 479-482
- <sup>4</sup> Tvarožek, V., Harman, R., Novotný, I.: Transparentná a vodivá dvojvrstva na sklenených substrátoch a spôsob jej výroby, *Vynález č. 234 859*, (1984)
- <sup>5</sup> Tvarožek, V., Novotný, I., Harman, R.: Naprašovanie tenkovrstvových senzorov tlaku a teploty, *Jemná mechanika a optika*, 5, XXXI., (1986), pp. 117-120
- <sup>6</sup> Tvarožek, V., Novotný, I., Harman, R.: Spôsob výroby platinovej tenkej vrstvy pre odporový snímač teploty, *Vynález č. 245 549*, (1988)
- <sup>7</sup> US AID Grant No. HRN-5600-G-00-2024-00/612866 „Lipid Bilayer-Based Electrochemical Biosensors for Diagnostics“ (1992-1997), vedúci projektu: H.T.Tien (Michigan State University), V.Tvarožek (STU Bratislava)
- <sup>8</sup> Tvarožek, V., Tien, H.Ti, Novotný, I., Hianik, T., Dlugopolský, J., Ziegler, W., Ottová, A., Jakabovič, J., Řeháček, V., Uhlár, M.: Thin-Film Microsystem Applicable in (bio-) Chemical Sensors, *Sensors and Actuators, B*, 18-19 (1994), pp.597-602
- <sup>9</sup> Bustín, D., Mesároš, Š., Tomčík, P., Rievaj, M., Tvarožek, V.: Application of redox cycling enhanced current at an interdigitated array electrode for iron-trace determination in ultrapure spectral carbon, *Analytica Chimica Acta*, 305, (1995), pp.121-125
- <sup>10</sup> Vavrinský, E., Soláriková, P., Stopjaková, V., Tvarožek, V., Brezina, I.: Implementation of Microsensor Interface for Biomonitoring of Human Cognitive Processes, In: *Biomedical Engineering. Trends in Electronics, Communications and Software*, InTech Rijeka (2011), pp. 93-110, ISBN 978-953-307-475-7
- <sup>11</sup> Durdík, Š., Tvarožek, V., Flickyngerová, S., Donoval, D.: Specific Behaviour of the Blood Sedimentation Processes Examined by the Electrochemical Impedance Microsensor. *Clinician and Technology*, Vol. 43 (2013), pp. 39-43
- <sup>12</sup> Tvarožek, V.: Microsystem technology in biosensors, *Biosensors for Direct Monitoring of Environmental Pollutants in Field*, NATO ASI series book, Series 2: Environment - Vol. 38, Kluwer AP Dordrecht/Boston/London, (1997), pp. 351-371
- <sup>13</sup> Ottová, A., Tvarožek, V., Racek, J., Sabo, J., Ziegler, W., Hianik, T., Tien, H. T.: Self-assembled BLMs: biomembrane models and biosensor applications, *Supramolecular Science*, Vol. 4, Numbers 1-2, (1997), pp. 101-112
- <sup>14</sup> Hianik, T., Šnejdárková, M., Sokolíková, L., Meszár, E., Krivánek, R., Tvarožek, V., Novotný, I., Wang, J.: Immunosensors based on supported lipid membranes, protein films and liposomes modified by antibodies, *Sensors and Actuators B*, 57, (1999), pp. 201-212
- <sup>15</sup> Tvarožek, V., Novotný, I., Šutta, P., Flickyngerová, S., Schtereva, K., Vavrinský, E.: Influence of sputtering parameters on crystalline structure of ZnO thin films, *Thin Solid Films* 515, (2007), pp. 8756-8760
- <sup>16</sup> Tvarožek, V., Szabó, O.: Sputtered Nanostructured Interfaces Used for Biochemical Sensing, *Proc. IEEE 32 Int. Conf. MIEL (2021)*, Niš, Serbia, pp. 189-192
- <sup>17</sup> Tvarožek, V.: Sculpturing of thin films and forming of nanostructures by vacuum evaporation and sputtering, 19. Škola Vákuovej Techniky, pp. 38-48, November 9 - 12, (2016), High Tatras, Štrbské Pleso, Slovak Republic
- <sup>18</sup> Shtereva, K.S., Novotný, I., Tvarožek, V., Vojs, M., Flickyngerová, S., Šutta, P., Vincze, A., Milosavljevic, M., Jeynes, C., and Peng, N.: Carrier Control in Polycrystalline ZnO:Ga Thin Films via Nitrogen Implantation, *ECS Journal of Solid State Science and Technology*, 1 (5) P237-P240 (2012)
- <sup>19</sup> Tippmann, H.: *Retrospektive 50 Jahre Zusammenarbeit STU Bratislava & TU Ilmenau, Festschrift 1965 – 2015*, TU Ilmenau (2015)

Prof. RNDr. Vladimír Tvarožek, PhD.

Emeritný pracovník Ústavu elektroniky a fotoniky FEI STU.

vladimir.tvarozek@stuba.sk

Prof. RNDr. Vladimír Tvarožek, PhD. (1943) je emeritný profesor na Ústave elektroniky a fotoniky FEI STU v Bratislave. Študoval na Matematicko-fyzikálnej fakulte Karlovej univerzity v Prahe v odbore „Experimentálna fyzika“ so zameraním na elektroniku a vákuovú fyziku pod vedením prof. Ľudmily Eckertovej. V rámci odboru Elektronika postupne zaviedol a prednášal 8 nových predmetov na FEI STU. a bol gestorom zamerania “Senzorika a mikrosystémová technika”. Menovaného vedecko-výskumná aktivita v rámci národných, ale najmä medzinárodných bilaterálnych a EC projektov, sa týkala tenkovrstvových senzoričkových mikro-/nano- štruktúr a rozhraní vhodných pre tlakové, teplotné a biochemické mikrosenzory, ako aj vývoja tenkovrstvových fotovoltaičkových solárnych článkov. Jeho prednáškovú a publikačnú činnosť najmä v zahraničí je možné zhodnotiť Hirsch indexom  $h = 16$ .

Ing. Ivan Novotný, PhD.

Emeritný pracovník Ústavu elektroniky a fotoniky FEI STU.

Ivan.novotny547@gmail.com

Ing. Ivan Novotný, PhD. (1950) bol vedecko-výskumný pracovník na Ústave elektroniky a fotoniky FEI STU v Bratislave. Študoval na Elektrotechnickej fakulte Slovenskej vysokej školy technickej v Bratislave v odbore Elektronické počítače. Menovaný bol nosným riešiteľom

národných, ale najmä medzinárodných bilaterálnych a EC projektov, so zameraním na technológiu prípravy tenkovrstvových mikro-/nano- štruktúr a rozhraní, najmä metódou vákuového vf naprašovania. Podieľal sa významnou mierou na vývoji a realizácii prototypov mikrosenzorov v oddelení Sensoriky a mikrosystémovej techniky. V rokoch 1992 - 1998 bol na krátkodobých pobytoch na Univerzite Regensburg a Technickej univerzite Ilmenau, kde riešil problematiku technológie prípravy piezoelektrických ZnO tenkých vrstiev pre mikroaktuátory s nízkou pracovnou frekvenciou. Je spoluautorom 5 vynálezov, viac ako 300 príspevkov v časopisoch (z toho 92 CC) a zborníkoch z vedeckých konferencií. Na tieto práce je viac ako 700 SCI citácií a Hirschov index 14.