



PODMANICZKY FRIGYES

„PHASE-FIELD CRYSTAL MODELING OF NUCLEATION AND GROWTH PROCESSES”

C. PHD ÉRTEKEZÉSÉNEK BÍRÁLATA

A megszilárdulási folyamatok pontos megértése technológiai szempontból rendkívül fontos, hiszen a különböző szerkezeti és funkcionális anyagokat általában olvadékok hűtésével állítjuk elő. Mivel a szilárd anyagok számos releváns tulajdonsága (mechanikai, elektromos, optikai, stb.) erősen függ a mikroszerkezettől, a megszilárdulással kapcsolatos egyik legfontosabb kérdés, hogy a létrejövő mikroszerkezet hogyan függ a megszilárdulás különböző paramétereitől. A jelenség megértése rendkívüli kihívást jelent az érintett méretskálák és fizikai elvek széles spektruma miatt. Például a csíráképződés atomi szintű folyamat, de a termodinamika törvényei vezérlik, a kristályszemcsék növekedését az oldott anyagok diffúziója és konvekciója vezérli, míg a kialakuló makroszkopikus szemcseszerkezet megértéséhez a kristályhibák keletkezésének kinetikáját is vizsgálni kell. Az összes fizikai folyamat vizsgálatára, a rendkívül széles méret- és időtartományok miatt, egyetlen modell keretei között nincsen lehetőség.

Podmaniczky Frigyes disszertációjában ezen komplex jelenségkör, azaz a nukleáció és a megszilárdulási folyamatok néhány olyan esetét vizsgálja, melyek lehetőséget adnak a háttérben meghúzódó fizikai folyamatok megismerésére és ezáltal a vizsgált jelenségek pontosabb megértésére. A fentiek értelmében a témaválasztás tehát teljes mértékben időszerű, technológiai szempontból releváns és beleillik a nemzetközi trendekbe. A jelölt a jelenséget az ún. phase field crystal (PFC, atomisztikus fázismező) modell keretei között vizsgálja. Ez egy alapjaiban fenomenologikus, termodinamikai elvekre épülő módszer, mely (a hagyományos fázistér elméletekkel ellentétben) képes atomi szinten feloldani a szilárd kristályos anyagokat. Nagy előnye a sűrűség funkcionál elméletekkel és a molekuladinamikai szimulációkkal szemben, hogy nagyságrendekkel hosszabb időskálán dolgozik, így a jelenségek szélesebb spektrumára alkalmazható. Ennek ára, hogy a PFC modellben nem valódi atomok vannak, csupán a rendparaméter maximumai reprezentálják azokat. A modellben nem léteznek pl. vakanciák és a folyadék állapotot a rendparaméter konstans értéke jellemzi, ott atomokról nem is beszélhetünk.

A disszertáció egy rövid bevezetővel kezdődik, melyben a jelölt bemutatja munkájának motivációját és célkitűzéseit valamint szót ejt a megszilárdulási folyamatokban megjelenő releváns skálákról. Az ezt követő három fejezet a dolgozat elméleti háttérét mutatja be kezdve a megszilárdulás lényegesebb elméleteinek bemutatásával. Ezt követően részletes áttekintést ad a PFC módszerről és az annak alapját képező szabadenergia-funkcionálról. Hangsúlyos szerepet kap annak bemutatása, hogy a fenomenologikus modell milyen közelítésekkel származtatható az analitikus Ramakrishnan-Yussouff (RY) sűrűségfunkcionál-elméletből. Azt, hogy a jelölt a PFC



módszer fizikai megalapozását ilyen részletességgel mutatja be, a dolgozat egyik nagy erősségének tartom és számomra azt mutatja, hogy a jelölt kutatómunkája során nem pusztán fekete dobozként használta a PFC módszert, hanem annak mély megismerésével fizikai kontextusba volt képes helyezni a kapott eredményeket. A negyedik fejezet a PFC elméletben alkalmazott mobilitási modelleket mutatja be, melyek segítségével időfüggő jelenségek vizsgálata válik lehetővé. Ezt a fejezetet is áthatja egyfajta kritikus szemlélet: a jelölt minden módszer esetén kitér azok korlátaira is.

A dolgozat érdemi része három fejezetre tagolódik. Az első (sorrendben az ötödik) fejezet a prekursor asszisztált nukleációval foglalkozik, azaz azzal a jelenséggel, hogy a nukleáció gyakran egy közbülső metastabil fázis megjelenésével megy végbe. A jelölt 3D-s PFC gyorshűtéses szimulációkat végez és megállapítja, hogy a BCC fázis megjelenését egy amorf prekursor klaszter kialakulása előzi meg. Ezt a megállapítást az elsőszomszéd-átlagolt bondorientációs rendparaméter és a radiális eloszlásfüggvények vizsgálata alapján teszi meg. A fejezettel kapcsolatos kérdésem:

- Milyen eljárások léteznek a megfigyelt prekursor fázis potenciális kísérleti igazolására a BCC fázis kialakulásakor? Történtek-e esetleg ilyen kísérleti vizsgálatok az irodalomban?

A hatodik fejezet a jelölt a hidrodinamikai mozgásegyenletek területén elért eredményeit mutatja be. Két dimenzióban vizsgálja a kristálynövekedés jelenségét egy olyan modellel, melyben a PFC dinamikát egy Navier-Stokes egyenlettel analóg mozgásegyenlet írja le, amely lehetőséget ad a hidrodinamikai sűrűségtranszport megfelelő leírására és a termikus zaj figyelembevételére. Az jelölt ezzel az ún. HPFC modellel vizsgálja a növekedés kinetikáját, különös tekintettel a létrejövő polikristályos szerkezet tulajdonságaira. Megállapítja, hogy az új szemcseorientációk megjelenéséért olyan szatellitkristályok felelősek, melyek a növekedési front mentén a folyadékfázis fluktuációiból alakulnak ki. Ezt követően kvantitatív vizsgálatokat mutat be arra vonatkozóan, hogy nagy túlhűtésnél milyen és mekkora belső feszültségek alakulnak ki az anizotrop növekedés során. Végezetül az inkompresszibilisen advektált HPFC modellel mutatja be, hogy kényszeráramlás során a heterogén nukleációval létrejött csírák bizonyos körülmények között leválhatnak a szubsztrát felületéről. A fejezettel kapcsolatos kérdéseim:

- A (3.3) egyenletben a PFC funkcionálban megjelenő c_0 és c_1 konstansok fizikai eredetét részletesen taglalja a jelölt. Nem világos azonban, hogyan kerülnek bevezetésre a HPFC modellben használt (4.6) összefüggésben megjelenő állandók. Ezek empirikus paraméterek, vagy itt is meg lehet találni a pontos fizikai jelentéseket?
- A szerző a 6.2.4 fejezetben bemutatja, hogy nagy túlhűtés esetén a sarkoknál történő gyorsabb növekedés inhomogén rácsálladáshoz vezet, mely felületi feszültségként jelenik meg az oldalélek középső részeinél, ahogy a 6.12-es ábrán látható. Megfigyelhető azonban egy sugárirányú fluktuáció is, melyre a szerző nem tér ki. Mi lehet ennek az oka ill. van-e/lehet-e ennek szerepe a növekedési folyamatokban?
- A dolgozat szövege és a 6.10 ábra alapján a felépülő belső feszültségek misfit diszlokációk megjelenéséhez vezetnek. Mi a diszlokációk megjelenésének fizikai feltétele? Létezik-e egy küszöbfeszültség érték vagy esetleg itt is egy különleges



mechanizmus során jönnek ezek létre? Mi befolyásolja a létrejövő diszlokációk sűrűségét?

A hetedik, és egyben leghosszabb fejezetben a jelölt epitaxiális filmek növekedési tulajdonságaival foglalkozik. Elsőként a releváns elméleti háttérrel mutatja be, majd a 7.2 fejezettől kezdődően saját eredményeit ismerteti. Az előző fejezethez hasonlóan 2D-s szimulációkra korlátozódik. A fő célkitűzés annak megértése, hogy milyen kritikus rétegvastagságnál jelennek meg azok a misfit diszlokációk, melyek a szubsztrát és a növekvő film rácsállandójának különbsége miatt fellépő rugalmas energiát képesek csökkenteni. Kiderül, hogy a diszlokációk megjelenését nem lehet az energiaminimum elve alapján megjósolni, hiszen topologikus hibák lévén azok kialakulásához egy megfelelő mechanizmus is szükséges. A megfelelő mechanizmust a jelölt az ATG instabilitásban fedezi fel, melyet részletesen taglal a disszertációban. A fejezettel kapcsolatos kérdéseim:

- A jelölt két helyen is említi, hogy a misfit definíciója az irodalomban nem egységes. Miért tartja ezt ilyen fontosnak kihangsúlyozni ill. mekkora hibákat okozhat a különböző definíciók használata?
- A 7.8 ábra alsó sorában a PFC modell szigetes növekedést jósol (bal oldali panel). A Voronoi-szerkesztés azonban tökéletes kristályt mutat. Pontosan milyen értelemben beszélhetünk szigetek kialakulásáról, hogyan lehetne a jelenséget kvantifikálni?
- A 7.2.4 fejezetben a jelölt a 7.11 ábra alapján megállapítja, hogy $7\lambda = 92\sigma_{\text{film}}$. Hogyan jutott erre a következtetésre? A 7.11 ábra alapján a moduláció amplitúdója kisebb, mint egy rácsállandó. Kapcsolatba hozható-e egy ilyen kis amplitúdójú moduláció az ATG instabilitással, azaz alkalmazható-e egy kontinuum elméletből származtatott jelenség az atomi méretskálán?
- A 7.16 ábra alapján a lineáris stabilitásanalízis azt jósolná, hogy a függvény maximumához tartozó hullámhossz valósul meg az ATG instabilitás során. Milyen kapcsolatban van ez a hullámhossz azzal, amit a misfit diszlokációk egyensúlyi távolsága ad meg (a 102. oldal második bekezdésében)?
- A dolgozat egyik eredménye, hogy a diszlokációk keletkezésének leírásához nem elegendő az energiaminimum elv alkalmazása, hanem a hibakeletkezés dinamikai folyamatát is meg kell érteni. Ez utóbbi hogyan változna 3D-ben? Várna-e a jelölt jelentős különbségeket az eredményekben 3D-s szimulációk esetén?

Az értekezés tehát a jelölt nukleációs és növekedési folyamatokkal kapcsolatos szimulációs és elméleti kutatási eredményeit mutatja be. Az érintett témakörök között egyaránt megtalálhatóak gyakorlati és elméleti szempontból releváns problémák. A dolgozat egyik legnagyobb erőssége a használt modell kiforrottsága és a jelölt azzal kapcsolatos mély és szerteágazó elméleti ismerete, mely az eredményeknek sokkal nagyobb súlyt tud adni. Az érdemi fejezetekhez tartozik egy-egy rövid leírás a jelölt saját hozzájárulásáról, ez azonban általában meglehetősen általános megfogalmazásokat tartalmaz. Mivel a jelölt a disszertáció alapjául szolgáló 5 publikációból négyben első szerző, nincs okom kételkedni abban, hogy a bemutatott munkák a jelölt önálló kutatómunkájának gyümölcsei. Az elért tudományos eredmények tehát öt rangos nemzetközi folyóiratban megjelent publikációban kerültek



Ispánovity Péter Dusán, PhD
Egyetemi docens
ispanovity.peter@ttk.elte.hu
Tel.: +36-1-372-2812

EÖTVÖS LORÁND TUDOMÁNYEGYETEM
ANYAGFIZIKAI TANSZÉK
1117 Budapest, Pázmány Péter sétány 1/A.

közlésre, ezzel a jelölt messze túlteljesíti a fokozatszerzés követelményeit.

A dolgozat formai kialakítása szép, igényes, angol nyelvezete világos, az elvárásoknak megfelelő. Az eredmények prezentálása szakszerű és követhető, az ábrák esztétikusak és könnyen értelmezhetőek. Úgy vélem, a dolgozat mind tartalmi, mind formai szempontból megfelel egy doktori disszertációval kapcsolatos elvárásoknak.

A megfogalmazott 8 tézispont a jelölt tudományos eredményeit bemutató fejezeteket összegzi. A korábban leírtak értelmében ezeket a téziseket új és önálló tudományos eredményeknek ismerem el.

A doktori értekezést nyilvános vitára alkalmasnak tartom.

Budapest, 2024. november 4.

Dr. Ispánovity Péter Dusán
egyetemi docens
ELTE TTK Anyagfizikai Tsz.