

va egymást átfedik a spektrum cutoff-tartománya felé. Alkalmos fémszűrővel az alacsonyabb rendű ($n \leq 10$) diszkrét vonalakat visszatartva, a transzmittált maradék spektrális tartomány teljesen folytonos lévén, egyetlen különálló attoszekundum időtartamú, igen intenzív impulzus kelthető. Már a meglévő kísérleti és elméleti eredmények alapján is ~ 10 as időtartamú impulzus várható [7]. A lézerintenzitás 10^{22} W/cm² értékre történő növelésével és további optimalizációval pedig a „zeptoszekundum” (zs, azaz 10^{-21} s) időtartamú fényimpulzusok előállítására is megvan a remény.

Az attoszekundumos impulzusok alkalmazásai

Tekintettel az alkalmazások igen nagy és növekvő számára, valamint széles körére, e cikk keretében csupán néhány kiragadott példa rövid ismertetésére szorítkozhatunk. Várható, hogy az attoszekundumos impulzusoknak az időfelbontott atom-, és elektronspektroszkópiában új utakat megnyitó alkalmazásai a tudomány igen sok területén rendkívüli új lendületet adnak.

Ilyen áttörést jelent a kriptonatom Auger-élettartamának valós idejű meghatározása, mérve az attoszekundum tartamú impulzussal történt ionizáció után az Auger-elektronnak a kontinuumba történő kiszabadulási idejét [4]. Számos munka foglalkozik azóta az atomi belső héjak attoszekundumos dinamikájával.

Egy másik új eredmény annak az előzőekben már tárgyalt folyamatnak a vizsgálata volt, amely során a lézertér által optikai alagútemisszióval az atomból „kihúzott”, majd a lézerfény polaritásváltásával ugyanoda „visszacsapott” elektron e visszaforduló pályán töltött idejének a lézerfény ciklusidejéhez viszonyított időzítését atomi skálájú, attoszekundumos pontossággal mérték [4].

Ugyancsak érdekesítő eredmények születtek az elektron-hullámcsomag attoszekundumos dinamikájával kapcsolatosan. Az egyik legegészségesebb munka [8] az „at-

toszekundumos kettős rés” kísérlet (a Young-féle optikai kettős réses ismert kísérlet analogonja), melynél azonban a „réseket” attoszekundumos időkapuk képezték az egyetlen különálló elektron-hullámcsomag számára. Ezen időbeli kettősrés-rendszeren a kvantummechanika alapelveinek szép demonstrálását valósították meg megmutatva az elektroninterferenciát, és egyben az elektronátmenetek attoszekundumos dinamikáját is.

A KFKI-ban 15 évvel ezelőtt végzett kutatásaink akkor még nem is sejtett fontossága az attoszekundumos fizika megalapozásában csak most, az elvégzett kísérletek során nyert bizonyítást. Az ismertetett eredmények és a látványos fejlődés a témakör számára további lehetőségek megvalósulását ígéri már a közeli jövőben.

Irodalom

1. FARKAS GY.: *A sokfotonos folyamatoktól az attoszekundumos fényimpulzusokig* – A kvantumoptika és -elektronika legújabb eredményei, Kiadók: Heiner Zs. és Osvay K., Szegedi Tudományegyetem (2006) 208
2. K.C. KULANDER, K.J. SCHAFER, J.L. KRAUSE: *Dynamics of short-pulse excitation, ionisation and harmonics conversion* – Super-Intense Laser-Atom Physics, edited by B. Piraux et al., Plenum Press, New York (1993) 95
3. M. LEWENSTEIN, PH. BALCOU, M.YU. IVANOV, A. L'HUILLIER, P.B. CORKUM: *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields* – Phys. Rev. A49 (1994) 2117
4. GY. FARKAS, CS. TÓTH: *Proposal of attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases* – Phys. Lett. A168 (1992) 447
5. P. AGOSTINI, L.F. DIMAURO: *The physics of attosecond light pulses* – Rep. Prog. Phys. 67 (2004) 813
6. KRAUSZ F.: *Atomok és elektronok mozgásban* – Fizikai Szemle 52/1 (2002) 12
7. A. ZAİR, O. TCHERBAKOFF, E. MÉVEL, E. CONSTANT, R. LÓPEZ-MARTENS, J. MAURITSSON, P. JOHNSON, A. L'HUILLIER: *Time-resolved measurements of high order harmonics confined by polarization gating* – Appl. Phys. B78 (2004) 869
8. G.D. TZAKIRIS, K. EIDMANN, J. MEYER-TER-VEHN, F. KRAUSZ: *Route to intense single attosecond pulses* – New J. Phys. 8 (2006) 19
9. F. LINDNER, M.G. SCHÄTZEL, H. WALTHER, A. BALTUŠKA, E. GOULIELMAKIS, F. KRAUSZ, D.B. MILOŠEVIĆ, D. BAUER, W. BECKER, G.G. PAULUS: *Attosecond Double-Slit Experiment* – Phys. Rev. Lett. 95 (2005) 040401

KOMPLEX KRISTÁLYMORFOLÓGIÁK MODELLEZÉSE HÁROM DIMENZIÓBAN

Pusztai Tamás, Bortel Gábor, Tóth Gyula, Gránásy László
MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézet, Budapest

A mindennapi életünkben előforduló kristályos anyagok jelentős része polikristályos, azaz nagyszámú kristályszemcséből épül fel. A polikristályos anyag fizikai tulajdonságai nagymértékben függenek az alkotó kristályszemcsék méret és összetétel szerinti eloszlásától, melyet a kristálycsíráképződés és -növekedés viszonya határoz meg. A polikristályos megszilárdulás leírásához tehát olyan elméletre van szükség, amely alkalmas mindkét folyamat leírására. Előző cikkünkben egy olyan, viszonylag egyszerű kontinuum leírást mutattunk be, melynek keretében sikeresen modellezhetők igen bonyolult kétdimenziós polikristályos megszilárdulási alakzatok [1]. A cikk megjelenése óta kidolgoz-

tuk fázismezőmodellünk háromdimenziós általánosítását [2, 3]. A jelen írásban az új modell által nyújtott egyedülálló lehetőségeket szeretnénk illusztrálni.

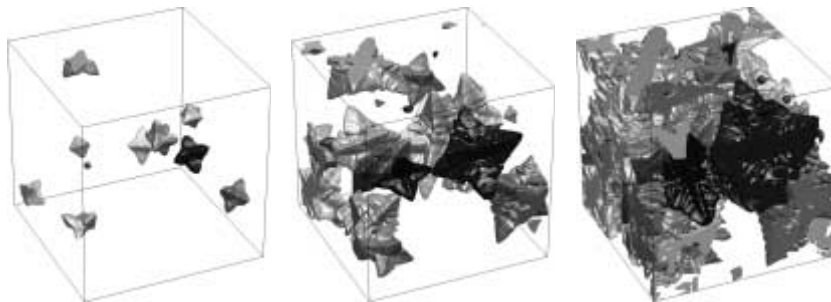
Mivel kiindulópontunk a korábbiakban ismertetett kétdimenziós fázismezőmodell, felidézünk annak néhány alapvető vonását. A lokális fizikai állapotot hely- és időfüggő skalármezőkkel jellemezzük. Így a szilárd-folyadék átmenet leírására a $\phi(\mathbf{r}, t)$ fázismezőt vezetjük be, melynek értéke egy és nulla között változik a kristály-folyadék határfelületen keresztül [1, 4–7]. A fázismező olyan, a kristályban jelenlevő szerkezeti tulajdonság, amely eltűnik a folyadékban (pl. a részecskesűrűség domináns Fourier-

komponensének amplitúdója). Többnyire két- vagy többkomponensű folyadék megszilárdulására vagyunk kíváncsiak, ezért további jellemzőként szerepelhetnek a lokális kémiai összetélt meghatározó – $c_i(\mathbf{r}, t)$ – koncentrációmezők, melyek időfejlődése (a kémiai diffúzió, illetve reakciókon keresztül) befolyásolhatja a kristályosodás folyamatát. A kristályosodó folyadék szabadenergiája több tagból tevődik össze. A tömbi fázisok összetétel- és hőmérsékletfüggő szabadenergiáján felül figyelembe kell vennünk a fázismező térbeli változásához rendelhető járulé-

kot is, melyet a gradiensnégyzet közelítés keretében tárgyalunk (ebből a tagból ered a felületi szabadenergia). A tömbi szabadenergia a lehetséges kristály-, illetve folyadékállapotok számától függően legalább két minimummal rendelkezik, melyek a makroszkopikusan megvalósuló stabil és metastabil fázisoknak felelnek meg. Kristályosodás során a rendszer a túlhűtött (metastabil) folyadéknak megfelelő lokális minimumból a stabil kristályos fázisnak megfelelő mélyebb minimumba kerül, miközben át kell jutnia e két minimum közti szabadenergia-gáton. Homogén túlhűtött folyadékból kiindulva erre csak a termikus fluktuációk figyelembevételével nyílik mód. Az átalakulás időbeli lefutását tehát az egyes mezők időfejlődését meghatározó nemlineáris mozgásegyenletek, a bennük szereplő mobilitások (melyek a translációs, illetve kémiai diffúziós együtthatókkal hozhatók kapcsolatba), illetve a termikus fluktuációkat reprezentáló zaj tulajdonságai együttesen határozzák meg. Ez utóbbiakat a fluktuációdisszipáció tétel határozza meg.

Több kristály egymással versengő növekedésekor meg kell különböztetnünk a különféle kristálytani orientációkat, azaz meg kell adnunk, hogy az egyes kristályszemcsék esetén a kristálysíkok hogyan állnak a laboratóriumi rendszerhez képest. Két dimenzióban ez a Kobayashi és munkatársai [8] által bevezetett *orientációs mező* segítségével tehető meg. Amennyiben azt is feltesszük, hogy a szilárd fázisban az orientációs tér változásához tartozó szabadenergia-járuléka arányos az orientációs mező gradiensének abszolútértékével, éles szemcsehatár és az orientáció szögkülönbségével arányos szemcsehatár-energia adódik, ami elfogadható közelítés kis és közepes szögű szemcsehatároknál.

Kobayashi és munkatársai [8] csak a kristályos fázisban értelmezték az orientációs mezőt. Valójában a kristályos rend, és ennek részeként a kristálytani orientáció is (azaz, hogy milyen irányban állnak az adott kristály síkjai) fokozatosan alakul ki a kristály–folyadék határterületen. E jelenség leírásához az orientációs mezőt a folyadéktartományokon is értelmeztük [1, 4–7], ahol a lokális orientáció időben és térben korrelálatlanul ingadozik, amit az orientációs mozgásegyenlethez adott zaj biztosít. Ehhez az alábbi fizikai kép rendelhető: Amennyiben megkeressük azt az irányt, melynél a kristályos elsőszomszéd-környezet a legjobban hasonlít a vizsgált folyadékmolekula környezetére (pl. szöggkorrelációt vizsgálunk), minden egyes fo-

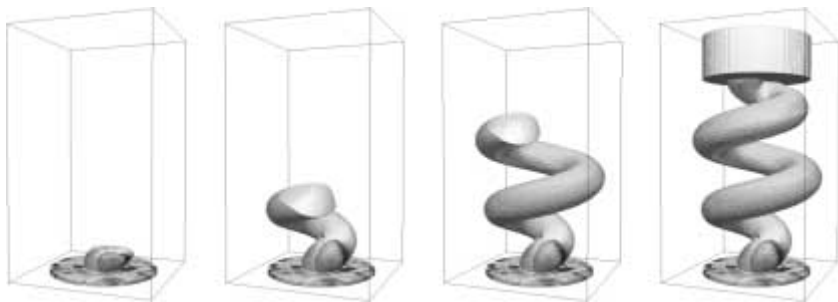


1. ábra. Véletlen orientációjú kristályok homogén nukleációja és dendrites növekedése $\text{Al}_{50,8}\text{Ti}_{49,2}$ olvadékból a kifejlesztett polikristályos fázismező elmélet szerint. A számolás $480 \times 480 \times 480$ rácson, köbös kristályszimmetriák és periodikus határfeltétel mellett történt. A felületi szabadenergia anizotrópiája 2,5%-os volt. A különböző szürke árnyalatok különböző kristálytani orientációkat jelölnek.

lyadékmolekulához hozzárendelhető egy pillanatnyi orientáció. Ez az orientáció térben és időben folyamatosan ingadozik. Azt, hogy a pillanatnyi illeszkedés mennyire jó, a másik szerkezeti rendparaméter, a fázismező aktuális értéke tükrözi. A kristályosodási fronton áthaladva a folyadékbeli véletlenül ingadozó lokális orientáció fokozatosan beáll az adott kristályszemcsét jellemző irányba. Az orientációs szabadenergia általunk javasolt formája biztosítja, hogy az orientációs rendeződés a fázismező változásával (a kristályosodással) szinkronban lép fel, míg a szilárd fázisban visszkapjuk az orientációs szögkülönbséggel arányos szemcsehatár-energiát.

Az orientációs mező időfejlődését leíró mobilitás az orientációs egyensúly kialakulásának időskáláját meghatározó úgynevezett rotációs diffúziós állandóval hozható kapcsolatba. Komplex molekuláris folyadékokban, alacsony hőmérsékleten, a rotációs diffúziós együttható jelentősen lecsökken a növekedési sebességet meghatározó translációs diffúziós együtthatóhoz képest. Ennek tulajdonítható a polikristályos növekedési mintázatok megjelenése nagy túlhűtéseknel. A gyorsan haladó megszilárdulási fronton nincs mód a tökéletes orientációs rend kialakulására: orientációs hibák, szemcsehatárok fognak be a kristályos fázisba. Ezen elképzelések alapján kétdimenziós modellünk segítségével a polikristályos alakzatok széles spektrumát reprodukáltuk [1, 4–7].

A három dimenzióra történő általánosítás azonban nem egyszerű. Szemben a kétdimenziós esettel, ahol egyetlen szög megadása elegendő egy kristálysík orientációjának rögzítéséhez, három dimenzióban három szög szükséges: a kristálysíkok normálisának iránya két szöggel adható meg. Azonban ezen tengely körül még egy további szöggel elforgatható a kristály. Definiálnunk kell emellett a két kristályszemcsé közötti orientációkülönbség mértékét is. Ehhez, az általánosság megszorítása nélkül, rendelünk derékszögű koordináta-rendszereket a kristályokhoz. A szemcsék orientációját jelképező két koordináta-rendszer egymásba vihető egyetlen jól meghatározott tengely körüli forgatással. Az orientációbeli különbség mérésére ezen forgatás szögét választjuk. Ezek után viszonylag egyszerűen megadható az orientációs szabadenergia olyan megfogalmazása, melyben (a) a szemcsehatár-energia arányos az orientációs fentiek szerint definiált szögkülönbségével, és (b) melyből a kétdimenziós határesetben visszkapjuk korábbi modellünket. További figyelmet igényel a kristályszimmetriák



2. ábra. Egykristály szerkezeti elemek öntésére szolgáló orientációszelektor fázismezőmodellje. A megszilárdulás felületi nukleációval indul a modell alján. A spirális nyakba csak néhány orientáció jut be, és csak egyetlen orientáció jut keresztül lehetővé téve, hogy a szerkezeti elem (a felső részen található henger) egykristályként szilárduljon meg. A különböző szürke árnyalatok különböző kristálytani orientációknak felelnek meg. A számolás $200 \times 200 \times 400$ -as rácson, köbös kristályszimmetriák és periodikus határfeltétel mellett történt. A felületi szabadenergia anizotrópiája 2,5%-os volt.

kezelése: Ha két kristályszemcse szimmetriaművelettel egymásba vihető, akkor kontinuummodellünkben nem képződhet közöttük szemcsehatár. Ezt az orientációs mozgásnyelvet megoldása során vesszük figyelembe.

A fentieknek megfelelően egy kétalkotós olvadék kristályos megszilárdulásának leírására csatolt, sztochasztikus parciális differenciálegyenleteket oldunk meg numerikusan, periodikus határfeltétel mellett. Ehhez párhuzamos számítógépes kódot fejlesztettünk ki, melynél a szimulációs ablakot olyan térbeli tartományokra osztjuk, amelyet egy-egy számítógép-processzor kezel. A szükséges számítási kapacitás biztosítására egy 61 és egy 121 processzorból álló személyi számítógép „fürtöt” építettünk fel az MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézetében. Az utóbbi egység számítási teljesítménye $\sim 0,5$ teraflop (azaz $0,5 \cdot 10^{12}$ lebegőpontos művelet másodpercenként). A háromdimenziós fázismező-szimulációk meglehetősen számításigényesek, így például az 1. ábrán látható szimuláció, melyet $\sim 110,6$ millió rácsponton végeztünk, közelítőleg egy hétig futott 100 processzoron.

A szimuláció során homogén, túlhűtött folyadék a kezdőállapot. A kristályos fázis megjelenése a kétdimenziós esethez hasonló módon [1], a termikus fluktuációkat modellező zaj hozzáadásával, véletlen helyen véletlen orientációval létrejövő csírák kialakulásával történik. Amennyiben nincsenek idegen felületek a rendszerben, a csíráképződés (nukleáció) a folyadék saját termikus fluktuációival – *homogén* módon – történik. Az idegen felületek elősegíthetik a kristálycsíra képződést, mely esetben *heterogén nukleáció*ról beszélünk. Minthogy a homogén csíráképződés valós körülmények között szinte sosem fordul elő, és a gyakorlat számára érdekes esetekben a kristálycsíráképződés a konténerfalakon, illetve idegen részecskék felületén heterogén módon történik, módszert dolgoztunk ki a heterogén nukleáció leírására. A nukleációval létrejött kristálycsírák tovább növekednek. Az ennek során fellépő diffúziós instabilitások és az anizotrópia összjátéka következtében bonyolult, úgynevezett dendrites alakzatok jöhetnek létre, melyek ágai jól meghatározott kristálytani irányokban nőnek (részletesebben ld. [1]). A modellünk által nyújtott lehetőségeket néhány látványos polikristályos mintázat létrejöttének folyamatán keresztül szemléltetjük. (Honlapunkon további információ kapható a fenti modellek részleteiről [9].)

A) A fentiekben említett homogén csíráképződés és dendrites növekedés útján történő megszilárdulás folyamata látható az 1. ábrán. A szimulációkban kialakuló dendrites morfológia igen hasonló a kísérletekben megfigyelthez, és az időfejlődést leíró kinetikus (Avrami–Kolmogorov) exponens is közel áll a kísérleti értékekhez.

B) Az egykristályelemek előállítására széles körben használt eszköz, az *orientációszelektor* („pigtail”= malacfarok) működését illusztrálja a 2. ábra. A megszilárdulás a minta alján felületi (heterogén) csíráképződéssel indul, s így kezdetben számos eltérő orientá-

ciójú kristályszemcse verseng egymással. A spirálisan kanyarodó orientációszelektoron (folyadékkal töltött csatornán) azonban már csak egyetlen orientáció jut keresztül, lehetővé téve egykristályelemek készítését.

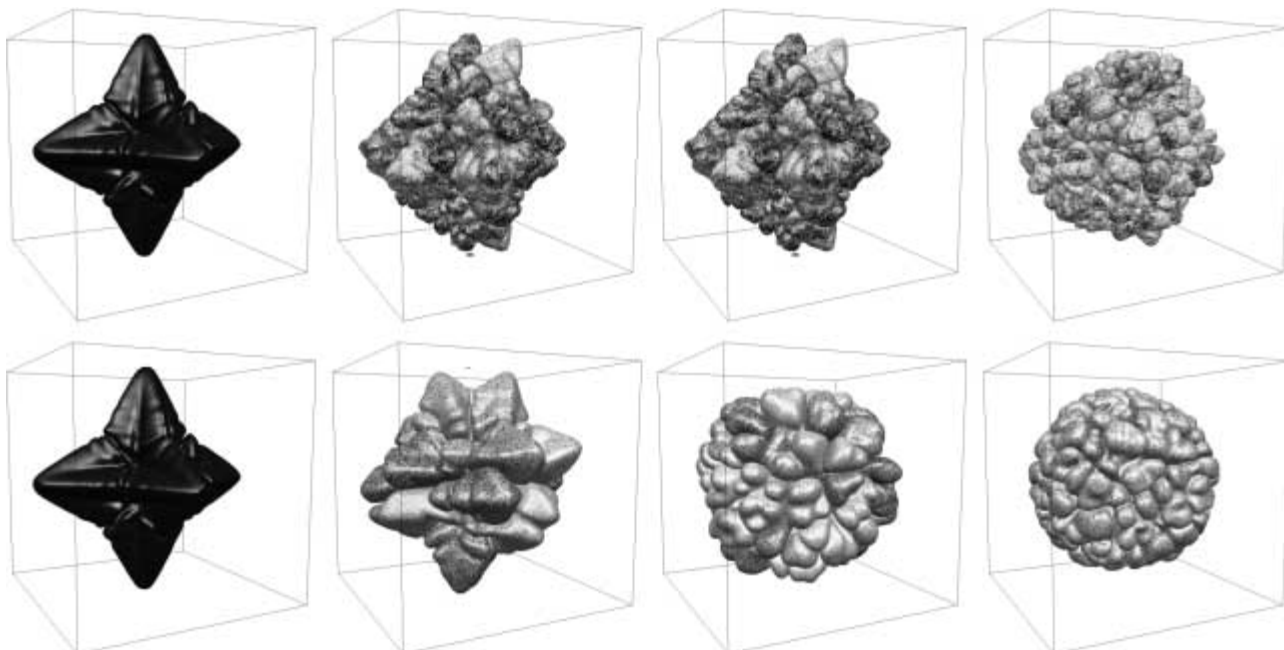
C) A kétdimenziós esethez hasonlóan, megfelelő körülmények között bonyolult *polikristályos növekedési formák* jönnek létre három dimenzióban is. Ezek a mintázatok egykristálycsírából erednek, de növekedésük során újabb és újabb kristályszemcsék képződnek a peremükön. Az eltérő orientációjú új szemcsék kialakulása kétféle módon is elérhető:

- i) Idegen részecskéket adalékolunk az olvadékhoz;
- ii) Lecsökkentjük az orientációs és fázismező mobilitások arányát.

Mindkét mechanizmus alkalmas arra, hogy az egykristály dendrites morfológiát polikristályos gömbszerű, úgynevezett szferolitikus (gömbszerű, részben vagy teljesen kristályos) alakzattá változtassuk (3. ábra). A morfológiai átmenet oka a következő. Bár a dendrites forma kialakulásához szükséges anizotrópia végig jelen van, az (i) esetben az idegen részecskék növekvő száma miatti zavar, míg a (ii) esetben a relatíve lassú orientációs rendeződés miatt fellépő orientációs hibák (szemcsehatárok) befagyasztása a kristályba csökkenti a szemcseméretet, aminek következtében egyre kevésbé érvényesül az anizotrópia hatása.

D) Az orientációs mobilitás csökkentésével analóg módon hat a *növekedési morfológiára* a *termodinamikai hajtóerő* (túlhűtés vagy túltelítés) növekedése. Ekkor a kristályosodási front haladási sebessége megnő, így nagyobb számban kerül sor az orientációs hibák szilárd fázisba történő befagyasztásával képződő új szemcsék kialakulására. A túltelítés növelésével a túszerű egykristály-növekedési forma fokozatosan átmegy a radiálisan növekvő szemcsékből álló térkitöltő, szferolitikus alakzatba (4. ábra). Megjegyzésre méltó, hogy a szferolitikus növekedési forma egyike a talán legáltalánosabb polikristályos alakzatoknak. Megfigyelték öntöttvasban (szferolitikus grafit szemcsék), fém- és oxidüvegekben, polimerekben, biopolimerekben. Szferolitikus szerkező lehet például a vesekő, az inzulinkristályok, vagy az érfalon képződő koleszterinlerakódás, de a csokoládéban is kialakulhatnak ilyen struktúrájú kristályszemcsék.

A polikristályos fázismező-elmélet csoportunk által kidolgozott háromdimenziós általánosítása lehetővé teszi



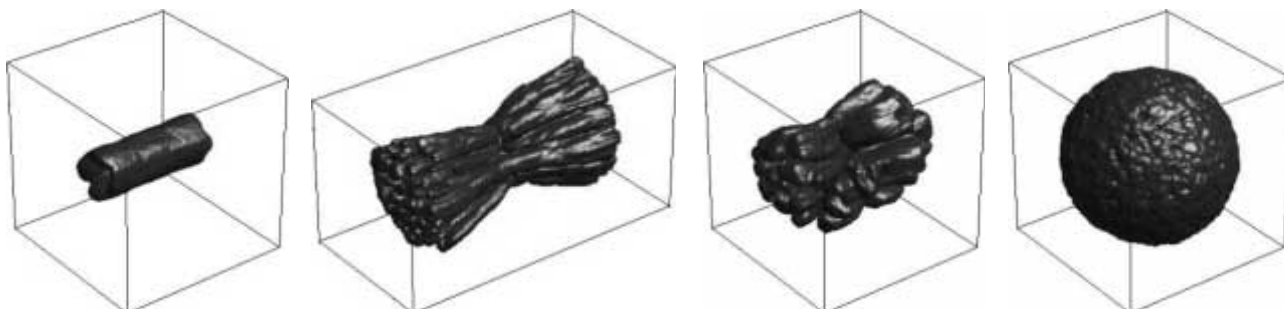
3. ábra. Morfológiai átmenet az egykristály dendrites szerkezet és a szferulitos polikristályos alakzat között. A felső sorban az idegen részecskék részecskesűrűsége balról jobbra 0, 0,6, 0,8 és 1,0 (tetszőleges egységekben). Az alsó sorban az orientációs mobilitás értéke szorozódik az alábbi faktorokkal: 1,00, 0,20, 0,15 és 0,10. A különböző szürke árnyalatok különböző kristálytani orientációknak felelnek meg. A számolás $200 \times 200 \times 200$ rácsos, köbös kristályszimmetriák és periodikus határfeltétel mellett történt. A felületi szabadenergia anizotrópiája 2,5%-os volt.

a természetben és a laboratóriumokban előforduló bonyolult polikristályos mintázatok kialakulásának modellezését. Termodinamikai adatbázisokkal és az olvadékok áramlását leíró hidrodinamikai kódokkal összekapcsolva modellünk hozzájárulhat a tudományos igényű anyagtervezés megalapozásához. A fenti kutatásokon alapuló mikroszerkezeti szimulációk fontos részét képezik az Európai Unió 6. keretprogramja által támogatott IMPRESS projektnek, valamint két, az Európai Űrügynökség/Magyar Űrkutatási Iroda által finanszírozott, ESA PECS pályázatnak, melyek célja gazdaságosabb gázturbinák, javított tulajdonságú mágneses és kompozit anyagok, valamint környezetbarát csapágyanyagok kifejlesztése, az ehhez szükséges elméleti/gyakorlati tudás létrehozása.

A szerzők köszönetüket fejezik ki Iglói Ferencnek és Tegze Györgynek a kéziratukkal kapcsolatos kritikai megjegyzéseikért és észrevételeikért.

A fenti vizsgálatok az EU FP6 IMPRESS projekt (NMP3-CT-2004-500635), és OTKA (T037323, K62588), valamint ESA PECS (98005, 98021) pályázatok támogatásával történtek. Pusztai Tamás és Bortel Gábor kutatásait Bolyai János ösztöndíj segítette.

4. ábra. Átmenet tűkristályból a polikristályos szferulitmintázatba a túltelítés növelésével. A szimulációk $200 \times 200 \times 200$, illetve $200 \times 400 \times 200$ rácsokon monoklin szimmetria és a fázismező mobilitásának erős aszimmetriája mellett történtek. Balról jobbra a túltelítés értéke rendre $S = 0,76$, $0,86$, $0,88$ és $0,90$.



Irodalom

1. GRÁNÁSY L., PUSZTAI T., BÖRZSÖNYI T.: *A polikristályos megszilárdulás térelméleti modellezése* – Fizikai Szemle 55 (2005) 203–211
2. T. PUSZTAI, G. BORTEL, L. GRÁNÁSY: *Phase field theory of polycrystalline solidification in three dimension* – Europhysics Letters 71 (2005) 131–137
3. T. PUSZTAI, G. BORTEL, L. GRÁNÁSY: *Phase field modelling of polycrystalline freezing* – Materials Science and Engineering A 413–414 (2005) 412–417
4. L. GRÁNÁSY, T. BÖRZSÖNYI, T. PUSZTAI: *Nucleation and bulk crystallization in binary phase field theory* – Physical Review Letters 88 (2002) 206105-1–4
5. L. GRÁNÁSY, T. PUSZTAI, J.A. WARREN, J.F. DOUGLAS, T. BÖRZSÖNYI, V. FERREIRO: *Growth of “dizzy dendrites” in a random field of foreign particles* – Nature Materials 2 (2003) 92–96
6. L. GRÁNÁSY, T. PUSZTAI, T. BÖRZSÖNYI, J.A. WARREN, J.F. DOUGLAS: *A general mechanism of polycrystalline growth* – Nature Materials, 3 (2004) 645–650.
7. L. GRÁNÁSY, T. PUSZTAI, J.A. WARREN: *Modelling polycrystalline solidification using phase field theory* – Journal of Physics: Condensed Matter 16 (2004) R1205–R1235
8. R. KOBAYASHI, J.A. WARREN, W.C. CARTER: *Vector-valued phase field model for crystallization and grain boundary formation* – Physica D 119 (1998) 415–423
9. <http://www.szfi.hu/~grana/crystal.html>