
Diffúzió és szilárdtest-reakció nanoskálán

MTA DOKTORI ÉRTEKEZÉS – TÉZISEK

ERDÉLYI ZOLTÁN



Debreceni Egyetem
Fizikai Intézet
Szilárdtest Fizikai Tanszék

2015. szeptember 7.

1. fejezet

Bevezetés

Fick első egyenlete az áramsűrűséget ($\vec{j}$: időegység alatt felületegységen átlépő részecskék száma), köti össze a koncentráció (ρ : térfogategységben levő részecskék száma) gradiensevel a D^* diffúziós együttható (köbös és izotróp közeg esetében) segítségével [1, 2]:

$$\vec{j} = -D^* \nabla \rho. \quad (1.1)$$

Nem stacionárius esetben a diffúziós áramsűrűség és a koncentráció hely- és időfüggőek. Ahhoz, hogy ebben az esetben is meghatározhassuk a diffúziós együtthatót, az anyagmegmaradás törvényét is számításba kell vennünk:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \nabla (D^* \nabla \rho). \quad (1.2)$$

Ha a koncentráció csak az x irányban változik:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D^* \frac{\partial \rho}{\partial x} \right). \quad (1.3)$$

Bevezetvén a $\lambda = x/\sqrt{t}$ paramétert – mely Boltzmann transzformációként ismeretes [3, 4] – az (1.3) egyenlet közönséges differenciálegyenletté transzformálódik:

$$-\frac{\lambda}{2} \frac{d\rho}{d\lambda} = \frac{d}{d\lambda} \left(D^* \frac{d\rho}{d\lambda} \right), \quad (1.4)$$

azaz a koncentráció csak λ függvénye.¹ Mindebből következik, hogy egy állandó koncentrációjú sík az idő négyzetgyökével arányosan tolódik el:

$$\rho\left(\frac{x}{\sqrt{t}}\right) = \text{const} \Rightarrow \frac{x}{\sqrt{t}} = \text{const} \Rightarrow x \propto \sqrt{t}. \quad (1.5)$$

Az $x \propto \sqrt{t}$ arányosságot gyakran *parabolikus törvénynek* nevezik, minthogy $x^2 \propto t$.

A nanoskálájú diffúzió legalapvetőbb kérdése az, hogy a Fick-i elmélet milyen rövid idők és hosszúságok esetében alkalmazható még. Ugyanis az (1.5) egyenletből az következik, hogy egy állandó koncentrációjú sík (pl. egy határfelület) eltolódási sebessége a végtelenhez tart ha az idő tart a nullához:

$$v_x = \frac{dx}{dt} \propto \frac{1}{2\sqrt{t}} \Rightarrow \lim_{t \rightarrow 0} v_x = \infty. \quad (1.6)$$

Ez természetesen azt is jelenti, hogy a diffúziós zóna szélessége is végtelen gyorsan növekszik miközben t tart a nullához. Továbbá az áramsűrűség végtelenül nagy, ha a koncentrációeloszlásban kezdetben szakadás van (jellemző helyzet kölcsönös diffúziós kísérletekben).

A kontinuum elméletekhez köthető problémák kiküszöbölésére használhatunk diszkrét/atomisztikus modelleket, úgy mint pl. kinetikus átlagtérmodell [5]), kinetikus Monte Carlo modell, molekuladinamika [6].

Azonban míg a kontinuum modellek általában makroszkopikusan definiált és mérhető bemeneti paramétereket igényelnek (pl. a Fick egyenletek a diffúziós együtthatót), addig az atomisztikus modellek használatához mikroszkopikus bemeneti paraméterek ismerete szükséges, mint pl. ugrási valószínűség, kölcsönhatási potenciálok, stb. melyek rendszerint nem mérhetőek (inkább indirekt módon becsülhetők kísérleti adatokból).

Az atomisztikus és a kontinuum modellek alkalmazhatóságánál egy másik szempont amit figyelembe kell venni az az, hogy a nanoskálájú diffúzióban a feszültséghatások – melyek pl. eredő térfogatáram, anyagok hőtágulási együtthatójának különbsége, határfelületeknél jelentkező rácsparaméter-különbségek miatt léphetnek fel – szerepe nagyon jelentős lehet. A feszültséghatások pedig hosszú ható távúak, míg az atomisztikus modellek rendszerint rövid ható távú kölcsönhatásokkal operálnak. Éppen ezért, nem ismerünk a feszültségeket pontosan figyelembe venni képes atomisztikus modellt. A feszültséghatások kontinuum modellekbe történő beillesztése azonban eléggé kézenfekvő a lineáris rugalmasságtan keretein belül. [7, 8]

¹Ez a transzformáció akkor tehető meg, ha mind a kezdeti, mind pedig a határértékek is kifejezhető λ függvényében.

Jelen doktori értekezés célja, hogy bemutassa a nanoskálájú, elsősorban térfogati diffúziós, valamint a nano- és a mikroskála közötti átmenet (azaz a diszkrét és kontinuum modellek) problémáit felfedő erőfeszítéseket és azok eredményeit, melyek munkásságom során születtek.

2. fejezet

Célkitűzések

Munkám során intenzíven használtam a kinetikus átlagtérmodellt, mely viszonylagos egyszerűsége ellenére rendkívül hatékony módszernek bizonyult nanoskálájú diffúziós/reakciódifúziós jelenségek felfedezésében, melyeket kísérletileg is sikerült később igazolnunk. Az elmúlt több mint egy évtized során azonban a G. Martin által felírt eredeti alak [5] folyamatos átalakuláson ment keresztül munkánknak köszönhetően. A modell alakítását, továbbfejlesztését mindig valamilyen új jelenség megértésének, leírásának vagy valós kísérleti probléma megoldásának szükségessége indukálta. A modell az értekezésben található több, további eredmény bemutatása során is szerepet játszik.

Mint azt G. Martin megmutatta [5], elvileg nagyon sokféleképpen megválasztható az ugrási frekvencia konkrét alakja annak biztosítására, hogy a modell a termodinamikai egyensúlyba vigye a rendszert. Minthogy a diffúziós együttható, s így az ugrási frekvencia hőmérsékletfüggésének leírására gyakorlatilag kizárólag Arrhenius típusú összefüggést tételez fel az irodalom, ezért a megválasztás szabadsága az aktivációs energiára korlátozódik. Az irodalomban két alak terjedt el. Az egyik a G. Martin által eredetileg javasolt alak, a másikat az ún. kinetikus erősen csatolt Ising modell (kinetic tight binding Ising model) [9] megalkotói javasolták. Hogy melyik megválasztás a jobb, vagy esetleg konkrét esettől függ, hogy melyik a jobb, nem volt tisztázott az irodalomban.¹ Ennek a kérdésnek a megválaszolását tűztem ki egyik kutatási célomul, valamint annak a tisztázását, hogy az ugrási frekvencia megválasztása milyen módon befolyásolja az ún. felületaktív (surfactant) beoldódási módot. Az értekezés saját eredményeimet bemutató első fejezete a modell továbbfejlesztését mutatja be, az 1. tézis pedig az ezen a területen elért eredményeket foglalja össze.

¹Franciaországban töltött éveim során volt szerencsém többször is találkoznom a kinetikus erősen csatolt Ising modell kidolgozóival. Ők sem tudták megmondani, hogy végül is mi az alapvető különbség a két megválasztás között.

Talán érdemes említést tenni arról, hogy az egydimenziós modellt nemrégén háromdimenziósra is általánosították. [10] A szerzők, munkánk elismeréseképpen a kinetikus átlagtérmodellt Martin-Erdelyi-Beke (MEB) modellnek nevezték el.

A kinetikus átlagtérmodellt intenzíven használtam arra célra is, hogy megvizsgáljam, hogy a diffúziós együttható koncentráció függése hogyan befolyásolja a koncentrációprofil alakját. A kinetikus átlagtérmodell mellett kontinuum modell használata is szükségesé vált, hogy számításba tudjam venni a diffúziós folyamatokban fellépő feszültséghatásokat is, hiszen azok nanoskálán akár jelentősen befolyásolhatják a folyamatokat. Az elméletileg megjósolt eredményeket pedig kísérletileg is igazoltam. Ezeket az eredményeket az értekezés saját eredményeket bemutató második fejezete mutatja be és a 2. tézis foglalja össze.

Munkám harmadik nagyobb célterülete a nanoskálájú anomális kinetikák elméleti és kísérleti vizsgálata volt, melyet az értekezés harmadik saját eredményeket bemutató fejezete tárgyal. Láttuk, hogy Fick második egyenlete inherensen tartalmazza azt, hogy egy állandó koncentrációjú sík az idő négyzetgyökével arányosan tolódik el. Mindez azonban nem áll fenn a kinetikus átlagtérmodell esetében. Így annak keretein belül megvizsgáltam, hogy ez a parabolikus törvényszerűség nanoskálán is teljesül-e különböző mértékű diffúziós aszimmetria és fázisszeperációs hajlam mellett. Mindemellett reakció diffúziós kinetikákat is vizsgáltam, ugyanis a reakció diffúzió fenomenologikus elmélete szerint a keletkező fázis növekedése, valamint az anyafázisok fogyása nem az idő négyzetgyökével arányosan történik, hanem például az idővel arányosan. Számos fenomenologikus elmélet létezik az anomális kinetika magyarázatára, amelyek a rendezett fázisok növekedése (szilárdtest-reakció) során kísérletileg megfigyelt anomális kinetikákat mindig valamiféle, a fázishatárnál jelentkező többlet energetikai gáttal magyarázzák. Ilyen gát természetszerűleg nincsen az általunk használt modellben, csupán a mozgékonyság erős függése kémiai összetételtől befolyásolhatja a kinetikát. Így ha megváltozik a kinetika, az alapvetően új megvilágításba helyezheti a szilárdtest-reakciós kinetikák analízisét. Azonban gyakran felvetődik, hogy a feszültséghatások is felelősek lehetnek a kinetika megváltozásáért. Éppen ezért a Stephenson modell [7] keretein belül megvizsgáltam, hogy a feszültségek hogyan befolyásolják a diffúzió kinetikáját. Az eredményeket a 3.1 tézispont foglalja össze.

Régóta fennálló paradoxon, hogy a négyzetgyökös (parabolikus) kinetika $t \rightarrow 0$ esetében egy állandó koncentrációjú sík, pl. egy határfelület eltolódási sebessége a végtelenhez tart. Ezt a problémát vizsgáltam analitikus formában, melynek eredményeit a 3.2 tézispontban foglaltam össze.

Az anomális kinetika kísérleti bizonyítása nanoskálájú határfelület elmozdulások kimutatását igényelte, melyhez módszerfejlesztésre is szükség volt. Ezeknek a munkáknak az eredményeit összegzi a 3.3 tézispont.

A szilárdtest-reakciót általában két szakaszra szokták bontani. Az egyik a nukleációs, a másik pedig a fázis stacionárius növekedése. Az előző fejezetben bemutatott vizsgálatok az utóbbi esetre fókuszáltak. Azonban a stacionárius növekedési szakasz előtti rész feltárását is célul tűztem ki. Az ide vonatkozó eredményeket az értekezés saját eredményeket bemutató negyedik fejezetében mutatom be.

Számos technológiai eljárásban lejátszódik szilárd fázisú reakció egymásra rétegzett tiszta anyagok között. Általánosságban az az elfogadott kép, hogy ilyen reakciók esetében sztöchiometrikus termékfázis keletkezik, majd az növekszik. Ha pedig egy ilyen fázis már létezik, pl. a szerkezet felépítése során már kialakul, akkor az tovább vastagszik. Megvizsgáltam, hogy mindez abban az esetben is fennáll-e, ha a diffúziós együttható erősen koncentrációfüggő. Az eredményeket a 4.1 tézispont foglalja össze.

Kísérletileg vizsgáltam, hogy egy intermetallikus fázis nukleációja és növekedése függ-e a szülő fázisok készítési sorrendjétől, azaz a rétegtrendtől. A kapott eredményeket a az irodalomban elfogadott három nukleációs mód segítségével értelmeztem és a 4.2 tézispontban foglaltam össze.

A kutatók alapvetően szilárdtest-reakciónak vagy a nukleációs szakaszára, vagy pedig a stacionárius növekedési szakaszára fókuszálnak. Kísérleti vizsgálatok elsősorban a stacionárius növekedési szakaszra léteznek, a nukleációs szakaszra nagyon ritka, lévén, hogy technikailag nagyon nehéz megvalósítani. A két szakasz közötti folyamatok vizsgálatára, azaz amikor már kialakult a folytonos reakcióréteg, de még nem állt be a stacionárius növekedés, gyakorlatilag nincsenek kísérleti ismereteink. Co/a-Si és Ni/a-Si rendszereken, elsősorban szinkrotron álló hullámos technikával végzett kísérletekkel, ennek az átmeneti szakasznak a vizsgálatát tűztem ki célul. Az eredményeket a 4.3 tézispont foglalja össze.

A Cu-Si rendszerrel ellentétben, létezik olyan eset is, amikor a rétegtrend nem befolyásolja a szilárdtest-reakciót. Például Schmitz et al. [11] atompróba tomográfia segítségével vizsgáltak sík Al/Cu/Al és Cu/Al/Cu hármas rétegeket. Azt találták, hogy az Al_2Cu intermetallikus fázis egyszerre keletkezik a hármas réteg mindkét határfelületénél és azonos ütemben növekszik. Azonban ha ugyanezt a kísérletet megismételték úgy, hogy a hármas réteget egy ~ 25 nm sugarú, félgömb alakú hordozóra készítették el (atompróba tomográfias tű hegyére), akkor érdekes módon azt tapasztalták, hogy Cu/Al határfelületnél gyorsabban növekedett a Al_2Cu fázis mindkét mintatípusban; tehát az Al/Cu/Al/hordozó esetében a belső (hordozóhoz közelebbi), míg a Cu/Al/Cu/hordozó

a külső határfelületnél. Ennek a jelenségnek a megértéséhez egy új modell kifejlesztését tűztem ki célul. Kidolgoztam egy komplett, analitikus egyenletrendszert, mely gömbi geometriájú, mag-héj típusú mintákban alkalmas a reaktív diffúzió leírására. Az eredményeket az értekezés utolsó fejezetében mutatom be, és az 5. tézis foglalja össze.

3. fejezet

Új tudományos eredmények

1. A kinetikus átlagtérmodell továbbfejlesztése

Megmutattam [T1.2], hogy a kinetikus erősen csatolt Ising modellben megadott aktivációs energia alakjából hiányzik a bolyongási diffúziós együtttható koncentrációfüggése. Egyértelműen el tudtam különíteni a bolyongási és a kémiai részt az ugrási frekvenciában. [T1.1, T1.2] Továbbá az ugrási frekvenciák megfelelő megválasztásával egyesítettem a Martin-féle és a kinetikus erősen csatolt Ising modell előnyeit és kiküszöböltem azok hátrányait. [T.2] Ezek az eredmények alkalmazhatók a kinetikus Monte Carlo számítások során használatos ugrási valószínűségek megfelelő megválasztásához is. Az új aktivációs energia segítségével megmutattam [T1.2], hogy a felületi és a felület alatti ugrások gyakoriságának az aránya nagymértékben hatással van a felületi szegregációs kinetikákra, továbbá, hogy a diffúziós aszimmetria mértéke jelentősen befolyásolja az ún. felületaktív (surfactant) beoldódási mód létezésének lehetőségét.

2. Határfelület élesedése kölcsönösen korlátlanul oldódó rendszerekben

2.1. Modellszámítások

Kinetikus átlagtér, kinetikus Monte Carlo [T2.1] és a diffúziós eredetű feszültségeket is figyelembevevő kontinuum [T2.2] modellek segítségével megmutattam, hogy ha két, egymásban kölcsönösen oldódó anyagot elválasztó határfelület kezdetben diffúz, pl. mintakészítési okokból, akkor a határfelület hőkezelés közben ahelyett, hogy még

diffúzabbá válna, ki is élesedhet, amennyiben a diffúziós együttható erősen függ a koncentrációtól – ez a természetben előforduló kétalkotós rendszerek esetében szinte mindig teljesül.

2.2. Kísérleti bizonyíték

Az atomisztikus (diszkrét) és a kontinuum modellszámolások eredményei alapján arra a következtetésre jutottam, hogy a határfelület élesedése diffúziós mechanizmustól, szerkezettől (kristályos, amorf) függetlenül megfigyelhető, amennyiben a diffúziós együttható erősen függ a koncentrációtól. Az élesedést szinkrotron forrás felhasználásával, in-situ röntgen reflektometriás mérések segítségével epitaxiálisan növesztett Mo/V multirétegben [T2.3], majd később atompróba tomográfia segítségével Ni/Cu multirétegekben is [T2.4] igazoltam kísérletileg.

3. Anomális diffúziós kinetikák

3.1. Modellszámolások

A kinetikus átlagtér modell segítségével megmutattam, hogy ha az atomok mozgékonyasága erősen függ a kémiai összetételtől, a parabolikus törvény rövidtávú diffúziós úthosszak/idők (nanodiffúzió) esetében nem áll fenn. A diffúziós aszimmetria szuperdiffúziós irányba tolja el a kinetikát, míg a fázisszeparáció a szubdiffúziós irányba. [T3.1]¹ Továbbá megmutattam [T3.2], hogy a diffúziós aszimmetria a rendezett fázis növekedési kinetikáját, illetve a fázishatárok eltolódási kinetikáját is befolyásolja. Mindemellett megmutattam [T3.3], hogy sokak várakozásával ellentétben, egyedül a feszültséghatások valószínűleg nem képesek anomális kinetika létrehozására.²

3.2. Lineáris-parabolikus átmeneti hossz

Egy lehetséges, atomisztikus képen alapuló megoldást [T3.4] adtam arra a paradoxonra, hogy négyzetgyökös kinetika során, $t \rightarrow 0$ esetében egy állandó koncentrációjú sík – pl. egy határfelület – eltolódási sebessége a végtelenhez tart. Megmutattam, hogy kezdetben a határfelület áteresztőképessége szabja meg a keveredést, míg később a szilároidat fázisbeli áram, melyet természetesen a Fick-i diffúzió vezérel. Megbecsültem azt a

¹Ezek az eredmények Katona Gábor PhD értekezésében is szerepelnek. Katona Gábornak tutora voltam a PhD munkája során.

²Ezek az eredmények Parditka Bence PhD dolgozatában is szerepelnek, akinek témavezetője voltam PhD munkája során.

határfelület eltolódási hosszt, melynél a kezdeti lineáris kinetika parabolikussá válik: reális esetekben 0.01 és 300 nm közzé esik.

3.3. Nanoskálájú határfelület-eltolódás kísérleti vizsgálata

Kifejlesztettem egy Auger elektronspektroszkópiával, röntgen-fotoelektron spektroszkópiával is jól használható módszert nanoskálájú határfelület-elmozdulás mérésére, melynek segítségével a fázisszeparálódó Ni/Au(111) [T3.5]³ és az ideális Si/Ge (amorf [T3.6], valamint kristályos [T3.7])⁴ rendszerekben végeztem méréseket és mindhárom esetben anomális kinetika adódott. Az amorf Si/Ge rendszerben az anomális kinetikából a Fick-i kinetikába történő átmenetet is sikerült kimérni. [T3.6] Co/amorf Si multirétegekben pedig elsősorban szinkrotronos diffrakciós mérésekkel mutattam ki [T3.2] anomális termék fázis növekedési és fogyási, valamint fázishatár eltolódási kinetikákat. Továbbá Cu/amorf Si kettős rétegekben másodlagos semleges-részecske tömegspektrometria és atompróba tomográfia segítségével mutattam ki anomális termék fázis és fázishatár eltolódási kinetikákat. [T3.8]

4. Szilárdtest-reakció korai szakasza

4.1. Vegyületfázisok visszaoldódása és nem sztöchiometrikus keletkezése

Megmutattam, hogy valós esetekben, a diffúziós aszimmetria miatt, a termék fázis messze nem sztöchiometrikus összetétellel keletkezik és növekszik szilárdtest-reakció során. Továbbá, egy kezdetben meglévő sztöchiometrikus összetételű réteg visszaoldódik, akár teljes egészében, majd nem sztöchiometrikus összetétellel újrakeletkezik és növekszik. [T4.1]

4.2. A rétegrend befolyása a Cu_3Si nukleációjára

Cu/a-Si/Cu és a-Si/Cu/a-Si hármas rétegeken végzett másodlagos neutrális rész tömegspektrometria (SNMS) és atompróba tomográfia (APT) mérések segítségével megmutattam, hogy a termék fázis nukleálódása, majd kezdeti növekedése nagyban függ

³Ezek az eredmények Katona Gábor PhD értekezésében is szerepelnek. Katona Gábornak tutora voltam a PhD munkája során.

⁴Ezek az eredmények Balogh Zoltán PhD értekezésében is szerepelnek. Balogh Zoltánnak társ-témavezetője voltam a PhD munkája során.

a rétegrendtől. [T4.2]⁵ Ugyanis a termék fázis nukleációját nagymértékben befolyásolja a szülő fázisokat elválasztó határfelület élessége, melyre viszont a rétegek elkészítésének sorrendje van jelentős hatással (dinamikus szegregáció). Az éles határfelület késlelteti az új fázis keletkezését és növekedését. A Cu-Si rendszerre vonatkozó termodinamikai adatokkal végzett számítások alapján polimorfikus nukleációs módként azonosítottam be a nukleációs sémát.

4.3. Fázisnövekedés nagy koncentráció gradiensben

Megmutattam [T4.3, T4.4]⁶, hogy egy szinkrotron állóhullámos módszer segítségével, hogyan tudjuk roncsolásmentes módon megmérni mintában az összetételprofil, kémiai információt nyerni a növekvő termékfázisról, továbbá, hogy paradox módon, egy kezdetben vastagabb reakcióréteg gyorsabban növekszik, mint egy vékonyabb. E paradoxon értelmezésére számítógépes modellszámolások segítségével megmutattam, hogy a határfelületek (kétfázisú tartományok) kezdeti vastagsága és az intermetallikus fázisban a mozgékonyság gyorsítása, kontrollálja a növekedés ütemét.

5. Reaktív diffúzió gömbi geometriában

Kifejlesztettem [T5.1] egy teljes analitikus egyenletrendszert a gömbi, mag-héj típusú szerkezetekben lejátszódó reaktív diffúziós folyamatok leírására. A modell figyelembe veszi a rugalmas feszültségek kialakulását és azok képlékeny relaxációját, továbbá a lehetséges nem egyensúlyi vakanciaeloszlásokat. Továbbá, termodinamikai hajtóerőket is tartalmaz az intermetallikus fázisok keletkezésének és növekedésének leírására. A modell felhasználásával megmagyaráztam, hogy a fázisnövekedés üteme miért függ a hármas réteg rétegrendjétől ($A/B/A$ and $B/A/B$) gömbi geometria esetében.

⁵Ezek az eredmények Parditka Bence PhD értekezésében is szerepelnek. Parditka Bencének témavezetője voltam a PhD munkája során.

⁶Ezeknek az eredmények egy része Parditka Bence PhD értekezésében is szerepel. Parditka Bencének témavezetője voltam a PhD munkája során.

A tézispontokhoz kapcsolódó közlemények listája

1. tézis

[T1.1] Z. Erdélyi, G. L. Katona, D. L. Beke.

Nonparabolic nanoscale shift of phase boundaries in binary systems with restricted solubility

Phys. Rev. B, 69:113407, 2004.

[T1.2] Z. Erdélyi, D. L. Beke

Importance the proper choice of transition rates in kinetic simulation of dynamic processes

Phys. Rev. B, 70:245428, 2004.

2. tézis

[T2.1] Z. Erdélyi, I. A. Szabó, and D. L. Beke

Interface sharpening instead of broadening by diffusion in ideal binary alloys

Phys. Rev. Lett., 89:165901, 2002.

[T2.2] Z. Erdélyi, D. L. Beke

Stress effects on diffusional interface sharpening in ideal binary alloys

Phys. Rev. B, 68:092102, 2003.

[T2.3] Z. Erdélyi, M. Sladeczek, L.-M. Stadler, I. Zizak, G.A. Langer, M. Kis-Varga, D.L. Beke, B. Sepiol

Transient Interface Sharpening in Miscible Alloys

Science, 306:1913, 2004.

[T2.4] Z. Balogh, M.R. Chellali, G.H. Greiwe, G. Schmitz, Z. Erdélyi

Interface sharpening in miscible Ni/Cu multilayers studied by atom probe

tomography

Applied Physics Letters, 99:181902, 2011.

3. tézis

[T3.1] Z. Erdélyi, G. L. Katona, D. L. Beke.

Nonparabolic nanoscale shift of phase boundaries in binary systems with restricted solubility

Phys. Rev. B, 69:113407, 2004.⁷

[T3.2] C. Cserháti, Z. Balogh, A. Csik, G.A. Langer, Z. Erdélyi, Gy. Glodán, G.L. Katona, D. L. Beke, I. Zizak, N. Darowski, E. Dudzik, R. Feyerherm

Linear growth kinetics of Nanometric silicides in Co/amorphous-Si and Co/CoSi/amorphous-Si thin films

J. Appl. Phys., 104:024311, 2008.

[T3.3] Z. Erdélyi, B. Parditka, D.L. Beke

Stress effects on the kinetics of nanoscale diffusion processes

Scripta Materialia, 64:938, 2011.

[T3.4] D. L. Beke, Z. Erdélyi

Resolution of the diffusional paradox predicting infinitely fast kinetics on the nanoscale

Phys. Rev. B, 73:035426, 2006.

[T3.5] G. L. Katona, Z. Erdélyi, D. L. Beke, Ch. Dietrich, F. Weigl, H.-G. Boyen, B. Koslowski, P. Ziemann

Experimental evidence for a nonparabolic interface shift on the nanoscale during the dissolution of Ni into bulk Au (111)

Phys. Rev. B, 71:115421, 2005.

[T3.6] Z. Balogh, Z. Erdélyi, D.L. Beke, G.A. Langer, A. Csik, H.-G. Boyen, U. Wiedwald, P. Ziemann, A. Portavoce, C. Girardeaux

Transition from anomalous kinetics toward Fickian diffusion for Si dissolution into amorphous Ge

Applied Physics Letters, 92:143104 2008.

[T3.7] Z. Balogh, Z. Erdélyi, D.L. Beke, U. Wiedwald, H. Pfeiffer, A. Tschetschekin, P. Ziemann

Dissolution kinetics of Si into Ge (111) substrate on the nanoscale

Thin Solid Film, 519:952, 2011.

⁷Az 1. tézisben is szerepel.

- [T3.8] B. Parditka, M. Verezhak, Z. Balogh, A. Csik, G.A. Langer, D.L. Beke, M. Ibrahim, G. Schmitz, Z. Erdélyi
Phase growth in an amorphous Si–Cu system, as shown by a combination of SNMS, XPS, XRD and APT techniques
Acta Materialia, 61:7173, 2013.

4. tézis

- [T4.1] Z. Erdélyi, D. L. Beke, A. Taranovskyy
Dissolution and off-stoichiometric formation of compound layers in solid state reactions
Applied Physics Letters, 92:133110, 2008.
- [T4.2] M. Ibrahim, Z. Balogh, P. Stender, R. Schlesiger, G.H. Greiwe, G. Schmitz, B. Parditka, G.A. Langer, A. Csik, Z. Erdélyi
On the influence of the stacking sequence in the nucleation of Cu₃Si: experiment and the testing of nucleation models
Acta Materialia, 76:306, 2014.
- [T4.3] Z. Erdélyi, C. Cserhádi, A. Csik, L. Daróczi, G.A. Langer, Z. Balogh, M. Varga, D.L. Beke, I. Zizak, A. Erko
Nanoresolution interface studies in thin films by synchrotron x-ray diffraction and by using x-ray waveguide structure
X-ray Spectrometry, 38:338, 2009.
- [T4.4] B. Parditka, J. Tomán, C. Cserhádi C, Zs. Jánosfalvi, A. Csik, I. Zizak, R. Feyerherm, G. Schmitz, Z. Erdélyi
The earliest stage of phase growth in sharp concentration gradients
Acta Materialia, 87:111, 2015.

5. tézis

- [T5.1] Z. Erdélyi, G. Schmitz
Reactive diffusion and stresses in spherical geometry
Acta Materialia, 60:1807, 2012.

Irodalomjegyzék

- [1] A. E. Fick. *Annalen der Physik und Chemie*, 94:59, 1855.
- [2] A. E. Fick. *Phil. Mag.*, 10:30, 1855.
- [3] Jean Philibert. *Atom movements: Diffusion and mass transport in solids*. Les Editions de Physique, Les Ulis, Paris, 1991.
- [4] Helmut Mehrer. *Diffusion in Solids*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2007.
- [5] G. Martin. *Phys. Rev. B*, 41:2279, 1990.
- [6] S. Yip, editor. *Handbook of Materials Modeling*. Springer, The Netherlands, 2005.
- [7] G.Brian Stephenson. Deformation during interdiffusion. *Acta Metallurgica*, 36(10): 2663 – 2683, 1988.
- [8] G.B. Stephenson. *Def. Diff. Forum*, 95-98:507, 1993.
- [9] A. Senhaji, G. Tréglia, B. Legrand, N. T. Barrett, C. Guillot, and B. Vilette. *Surf. Sci.*, 274:297, 1992.
- [10] N.V. Storozhuka, K.V. Sopiga, and A.M. Gusak. *Phil. Mag.*, 93, 2013.
- [11] G. Schmitz, C. B. Ene, and C. Nowak. *Acta Materialia*, 57(9):2673 – 2683, 2009.