long-term mixing and an approximately linear dependence of the average length on the intensity of mixing.

Keywords: nanostructures, nanobelts, metal oxides, vanadium pentoxide, nonequilibrium systems, ballistic jumps.

Одержано редакцією 10.08.2021
Прийнято до друку 10.09.2021

ORCID: 0000-0003-1555-3831
Н. В. Сторожук
Кандидат фіз.-мат. наук,
Черкаський національний університет імені Богдана Хмельницького,
Черкаси, Україна, nadushenka@ukr.net

ORCID: 0000-0002-2594-5559
А. М. Гусак
Доктор фіз.-мат. наук, професор,
Заслужений діяч науки і техніки України,
Черкаський національний університет імені Богдана Хмельницького,
Черкаси, Україна, amgusak@ukr.net

УДК 538.9 PACS 66.30.−h
DOI: 10.31651/2076-5851-2021-31-43

ЗАСТОСУВАННЯ МЕТОДУ SKMF ДО МОДЕЛЮВАННЯ ВЗАЄМНОЇ ТА РЕАКЦІЙНОЇ ДИФУЗІЇ В ПОТРІЙНИХ СПЛАВАХ[3]

Нещодавно розроблена авторська модифікація середньопольового методу опису реакційної дифузії та конкуренції проміжних фаз узагальнена з випадку бінарних систем на потрійні сплави (тверді розчини, впорядковані проміжні фази та двофазні зони). При цьому враховується взаємодія між атомами у двох координаційних сферах. Для відпрацювання методу температура та енергії взаємодії підібрані так, щоб на двох сторонах (AB і BC) концентраційного трикутника було по одній проміжній упорядкованій фазі з вузьким інтервалом гомогенності, а на третій стороні (AC) була повна розчинність. Досліджені вибір дифузійного шляху та кінетика взаємної дифузії, впорядкування та росту проміжних фаз, в залежності від складу вихідної дифузійної пари.

Ключові слова: дифузія, фазоутворення, ріст, упорядкування, діаграми стану, потрійні системи, дифузійні траєкторії, конкуренція фаз.

1. Вступ

Процеси взаємної дифузії у сплавах із утворенням і ростом проміжних фаз є актуальною задачею фізичного матеріалознавства, розв'язання якої необхідно для

[3] Робота виконана при підтримці МОН України.

прогнозування властивостей з'єднань між матеріалами, зокрема, у мікроелектроніці. Якщо для бінарних сплавів основні принципи розв'язку подібних задач вже визначені [1-5], то для багатокомпонентних сплавів і, зокрема, потрійних – задача продовжує бути неоднозначною і дуже далекою від розв'язання.

Зокрема, існує проблема неоднозначного вибору дифузійних шляхів у концентраційному трикутнику, проблема утворення чи не утворення двофазних зон, проблема нестійкості дифузійних шляхів у двофазних зонах, тощо [6-8].

З прикладної точки зору, додавання третього компоненту до бінарного сплаву є відомим способом оптимізації властивостей з'єднання матеріалів. Зокрема, додавання кількох відсотків цинку у припій на основі олова дозволяє суттєво зменшити пористість паяних з'єднань.

Аналогічний ефект досягається нанесенням нанометричного прошарку на контакт між міддю та припоєм, а також добавками нікелю до мідної підложки припійного з'єднання [9,10]. На сьогоднішній день підбір добавок третього компоненту для оптимізації контактної зони відбувається, в основному, емпіричним шляхом. Існує потреба у встановленні теоретичної основи впливу третього компоненту на фазовий склад і кінетику при взаємній та реакційній дифузії у потрійних системах.

В даній роботі ми робимо спробу теоретичного аналізу вказаних процесів на основі розширення на потрійні системи, нещодавно запропонованого методу атомної міграції та фазоутворення, який отримав назву Стохастичного кінетичного середньо-польового методу (SKMF – Stochastic Kinetic Mean-Field) [11-14].

2. Основні рівняння моделі для потрійного сплаву

На відміну від відомого кінетичного методу Монте-Карло, кожному вузлу кристалічної гратки приписується в кожен момент часу не конкретний атом сорту *A*, *B* або *C*, а імовірності перебування в даному вузлі атомів сорту *A*, *B* або *C*, які ми далі коротко називаємо концентраціями c_A, c_B, c_C, $c_A + c_B + c_C = 1$. Основне кінетичне рівняння для швидкості зміни цих імовірностей в довільному вузлі гратки [*i*] (зауважимо, що під «*i*» мається на увазі три просторових координати вузла i, j, k) записується у формі балансу потоків імовірностей із даного вузла [*i*] у сусідні вузли [*in*] та, навпаки.

В даній роботі ми обмежимося найпростішим для моделювання обмінним механізмом дифузії. У випадку обмінного механізму вказані кінетичні рівняння для імовірностей c_A та c_B у вибраному вузлі мають наступний вигляд:

$$\frac{dc_A[i]}{dt} = \sum_{in=1}^{Z}\left(-c_A[i]c_B[in]\Gamma[i(A),in(B)] + c_B[i]c_A[in]\Gamma[in(A),i(B)]\right) + \\ + \sum_{in=1}^{Z}\left(-c_A[i]c_C[in]\Gamma[i(A),in(C)] + c_C[i]c_A[in]\Gamma[in(A),i(C)]\right) \tag{1a}$$

$$\frac{dc_B[i]}{dt} = \sum_{in=1}^{Z}\left(-c_B[i]c_A[in]\Gamma[i(B),in(A)] + c_A[i]c_B[in]\Gamma[in(B),i(A)]\right) + \\ + \sum_{in=1}^{Z}\left(-c_B[i]c_C[in]\Gamma[i(B),in(C)] + c_C[i]c_B[in]\Gamma[in(B),i(C)]\right) \tag{1b}$$

$$c_C = 1 - c_A - c_B \tag{1c}$$

В цих рівняннях величини Γ є частотами (імовірностями в одиницю часу) обміну атомів *A* та *B*, що знаходяться у сусідніх вузлах. Наприклад, перший доданок у правій частині рівняння (1a), помножений на малий інтервал часу *dt*,

$\left(-c_A[i]c_B[in]\Gamma[i(A),in(B)]dt\right)$ – це зменшення імовірності перебування атома сорту *A* у вузлі [*i*], внаслідок обміну атома *A* із вузла [*i*] з атомом сорту *B* із вузла [*in*]. Точніше кажучи, $c_A[i]$ – це імовірність того, що у вузлі знаходився атом сорту *A*, $c_B[in]$ – це імовірність того, що у сусідньому вузлі знаходився атом сорту *B*, $\Gamma[i(A),in(B)]dt$ – імовірність того, що вони виконають обмін протягом короткого часу *dt*. Важливою рисою методу SKMF є його самоузгодженість, яка зводиться до того, що частоти обмінів визначаються енергіями атомів до обміну, а енергії атомів визначаються їх локальним оточенням, тобто концентраціями у місці стрибка. Таким чином рівняння (1), не зважаючи на свій начебто лінійний вигляд, є суттєво нелінійними по концентраціям. Нелінійність виражається не лише наявністю добутків концентрацій перед частотами, але, в першу чергу, також експоненційною залежністю частот від енергій, які в свою чергу лінійно залежать від локальних концентрацій:

$$\left.\begin{aligned}
\Gamma[i(A),in(B)] &= \nu_0 \exp\left(-\frac{E^S-\left(E_A[i]+E_B[in]\right)}{k_Б T}\right)\\
\Gamma[in(A),i(B)] &= \nu_0 \exp\left(-\frac{E^S-\left(E_A[in]+E_B[i]\right)}{k_Б T}\right)\\
\Gamma[i(A),in(C)] &= \nu_0 \exp\left(-\frac{E^S-\left(E_A[i]+E_C[in]\right)}{k_Б T}\right)\\
\Gamma[in(A),i(C)] &= \nu_0 \exp\left(-\frac{E^S-\left(E_A[in]+E_C[i]\right)}{k_Б T}\right)\\
\Gamma[i(B),in(C)] &= \nu_0 \exp\left(-\frac{E^S-\left(E_B[i]+E_C[in]\right)}{k_Б T}\right)\\
\Gamma[in(B),i(C)] &= \nu_0 \exp\left(-\frac{E^S-\left(E_B[in]+E_C[i]\right)}{k_Б T}\right)
\end{aligned}\right\} \qquad (2)$$

Слово «середньо-польовий» у назві методу відповідає структурі рівнянь (3). Наприклад, перше з цих рівнянь трактується наступним чином: середньо-польова енергія взаємодії атома з сусідами визначається сумою по всім сусіднім вузлам наступних добутків – добуток імовірності перебування атома сорту *A* на енергію V_{AA} ***плюс*** добуток імовірності перебування атома сорту *B* на енергію V_{AB} ***плюс*** добуток імовірності перебування атома сорту *C* на енергію V_{AC} :

$$\left.\begin{aligned}
E_A[i] &= \sum_{in=1}^{Z}\left(c_A[in]V_{AA} + c_B[in]V_{AB} + c_C[in]V_{AC}\right)\\
E_A[in] &= \sum_{inn=1}^{Z}\left(c_A[inn]V_{AA} + c_B[inn]V_{AB} + c_C[inn]V_{AC}\right)\\
E_B[i] &= \sum_{in=1}^{Z}\left(c_A[in]V_{BA} + c_B[in]V_{BB} + c_C[in]V_{BC}\right)\\
E_B[in] &= \sum_{inn=1}^{Z}\left(c_A[inn]V_{BA} + c_B[inn]V_{BB} + c_C[inn]V_{BC}\right)\\
E_C[i] &= \sum_{in=1}^{Z}\left(c_A[in]V_{CA} + c_B[in]V_{CB} + c_C[in]V_{CC}\right)\\
E_C[in] &= \sum_{inn=1}^{Z}\left(c_A[inn]V_{CA} + c_B[inn]V_{CB} + c_C[inn]V_{CC}\right)
\end{aligned}\right\} \qquad (3)$$

де [*in*] – координата сусіда атома [*i*], [*inn*] – координата сусіда атома [*in*], $V_{AC} = V_{CA}$, $V_{AB} = V_{BA}$, $V_{BC} = V_{CB}$

Формули (1)-(3) утворюють самоузгоджену систему рівнянь, яка описує еволюцію системи із зменшенням потенціалу Гіббса. Якщо на шляху еволюції виникає, наприклад, нуклеаційний бар'єр, у випадку фазових переходів першого роду, то для його подолання додатково вводиться шум частот переходів. Деталі введення шуму описані в роботах [12, 13].

Для чисельних розрахунків зручно перейти до безрозмірного часу

$$t(\dim ensionless) = \nu_0 \exp\left(-\frac{E^S}{k_Б T}\right) t(s)$$

3. Параметри системи та представлення результатів

Як видно з досвіду застосування SKMF до бінарних систем [15] та з моделювання реакційної дифузії методом Монте-Карло [16], для адекватного моделювання формування і росту впорядкованих фаз ефективним способом є введення взаємодій не лише у першій, але й у другій координаційних сферах з відповідним підбором величин і знаків енергій змішування в обох координаційних сферах. У даній роботі ми представляємо перші результати моделювання при наступному виборі параметрів:

моделюємо ОЦК-гратку, $Z^{II} = 6$, $Z^{I} = 8$, $V_{AA}^{I} = V_{BB}^{I} = V_{CC}^{I} = -10^{-21}\,Дж$, $V_{AB}^{I} = V_{BC}^{I} = -3.9\cdot 10^{-21}\,Дж$, $V_{AC}^{I} = -1.98\cdot 10^{-21}\,Дж$, $V_{AA}^{II} = V_{BB}^{II} = V_{CC}^{II} = -8.76\cdot 10^{-21}\,Дж$, $V_{AB}^{II} = V_{BC}^{II} = -2\cdot 10^{-21}\,Дж$, $V_{AC}^{II} = -4.76\cdot 10^{-21}\,Дж$, T= 750 K

Для дослідження фазової діаграми, як і для дослідження кінетики, використовуємо метод дифузійних пар [17].

Результати аналізуємо у вигляді профілів $c_A(x), c_B(x), c_C(x)$ у відповідних дифузійних парах, а також, паралельно, у вигляді дифузійних шляхів у концентраційному трикутнику (вершина *A* в початку координат ($x_A = 0, y_A = 0$), вершина C на осі абсцис на відстані 1 від початку координат ($x_C = 1, y_C = 0$), а вершина B – в точці з координатами

$x_B = 0.5, y_B = \sqrt{3}/2$, а кожній площині відповідає точка з координатами $x = c_C[i] + 1/2 \cdot c_B[i], y = c_B[i] \cdot \sqrt{3}/2$.

Для повного аналізу потрібно знати термодинамічні дані, і, в першу чергу, ізотермічний зріз фазової діаграми потрійної системи при фіксованій температурі. Ми намагались підібрати енергії взаємодії у першій і другій координаційній сферах так, щоб отримати цей зріз близьким до зображеного на Рис. 1.

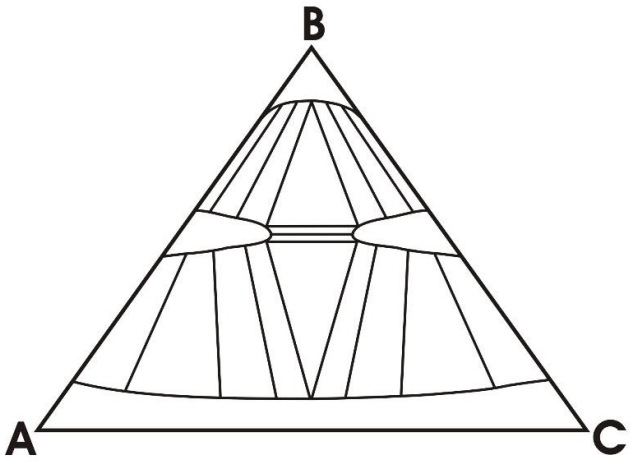


Рис. 1. Схематичне зображення можливого ізотермічного зрізу фазової діаграми.
Fig. 1. Schematic representation of a possible isothermal section of the phase diagram.

Як бачимо, ми сподіваємось мати впорядковані фази з майже стехіометричною концентрацію на стороні A-B із деякою можливістю розчинення домішки C, і на стороні C-B із деякою можливістю розчинення домішки A. На стороні AC ми очікуємо повної розчинності, але з можливістю впорядкування в околі 50 відсотків A і C.

Розглянемо спочатку дифузію і рівноваги на сторонах концентраційного трикутника.

Дифузійна пара A-B дає ріст проміжної впорядкованої фази AB з малим перепадом концентрацій до повного вичерпання вихідних компонент A і B – рис.2.

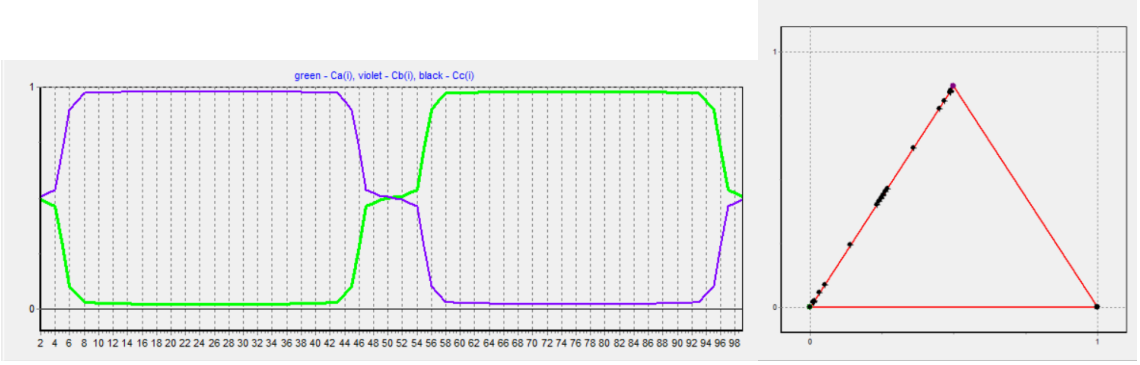


Рис.2. Концентраційний профіль (з усередненням по трьом сусіднім атомним площинам) і впорядкована структура AB при проміжному часі відпалу пари A-B.
Fig. 2. Concentration profile (averaged over three adjacent atomic planes) and ordered structure of AB at intermediate annealing time of A–B pair.

Дифузійна пара A-AB (впорядкована фаза) показує невеличке «під'їдання» впорядкованої фази і невеличкий підйом концентраційної щаблини від чистого A до слабкого розчину B в A – Рис.3.

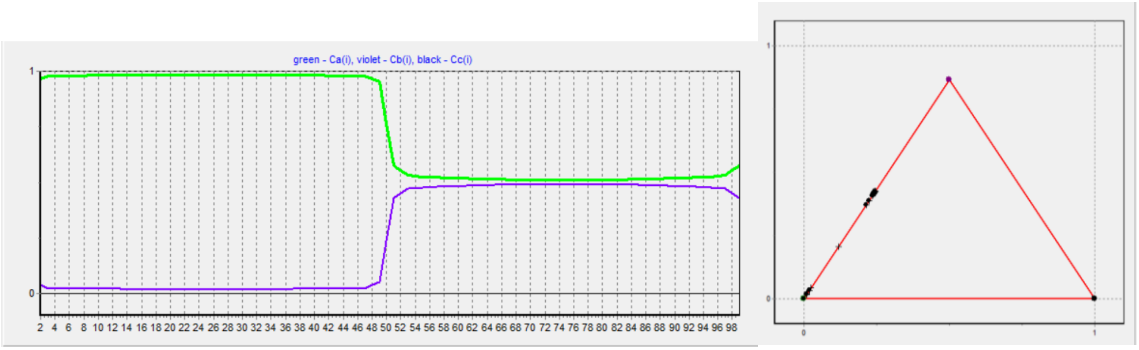
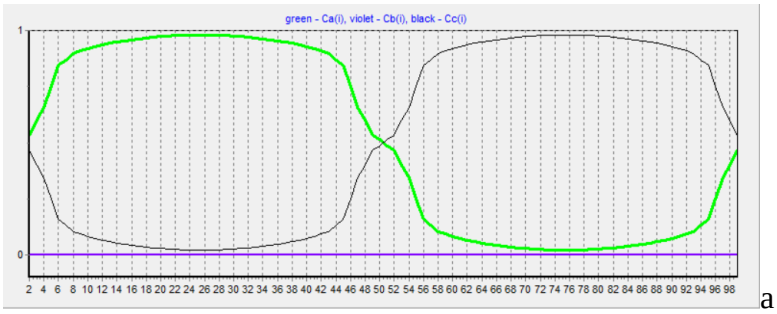
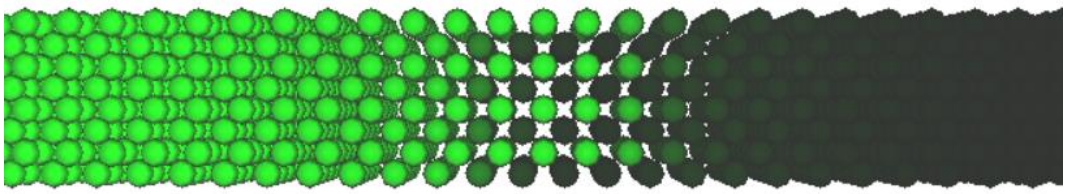


Рис. 3. Остаточний концентраційний профіль у дифузійній парі A-AB.
Fig. 3. The final concentration profile in the diffusion pair A–AB.

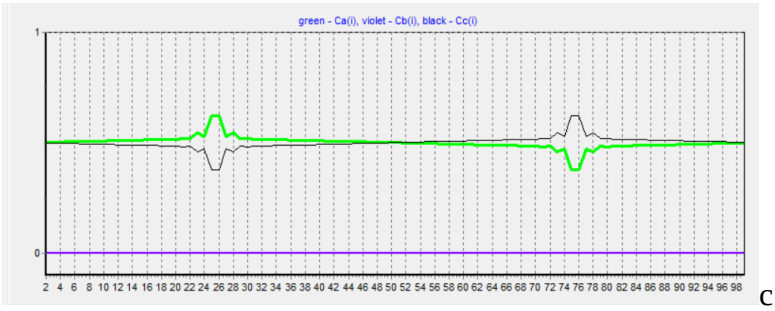
Сторона CB при нашому виборі параметрів повністю ідентична стороні AB. На стороні AC, у дифузійній парі A-C спостерігається повна розчинність – неперервний концентраційний профіль. Щоправда, в центральні частині відрізка AC спостерігається впорядкування, але без виділення окремого плато, як на сторонах AB і CB. – Рис.4 a,b. Остаточний вигляд концентраційного профілю (Рис.4c) – це просто постійна концентрація майже всюди. Два піки протилежного знаку на цій горизонтальній кривій, очевидно, відповідають місцям зустрічі антифазних упорядкованих доменів.



a



b



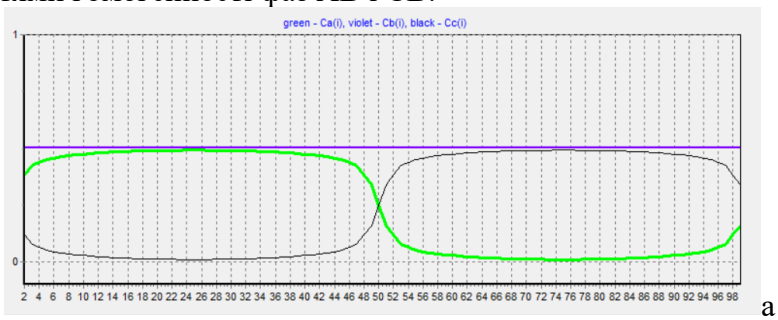
c

Рис.4. Відпал дифузійної пари A-C.
(a) Концентраційний профіль пари A-C при проміжних значеннях часу відпалу.

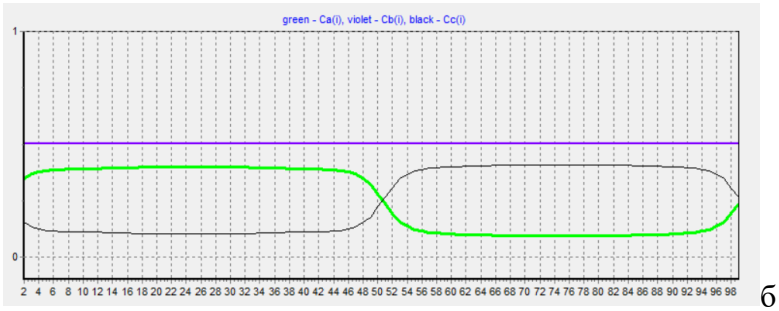
(b) Картина розподілу концентрацій (імовірностей) компонентів по вузлам показує впорядкування в центральній частині пари.
(c) Концентраційний профіль (усереднений по найближчим сусіднім площинам) після повної гомогенізації.

Fig.4. Annealing of diffusion pair A–C.
(a) Concentration profile of the diffusion couple A–C at intermediate annealing times.
(b) The pattern of distribution of concentrations (probabilities) of components by nodes shows the ordering in the central part of the couple.
(c) Concentration profile (averaged over the nearest adjacent planes) after complete homogenization.

Далі ми дослідили дифузійну взаємодію між впорядкованими проміжними фазами AB і CB – Рис. 5a,b. Графіки підтверджують існування розриву по компонентам A і C між областями гомогенності фаз AB і CB.



а



б

Рис. 5. Взаємодія між двома упорядкованими фазами AB і CB.
(a) Концентраційні профілі після проміжного відпалу.
(b) Концентраційні профілі після довгого відпалу.

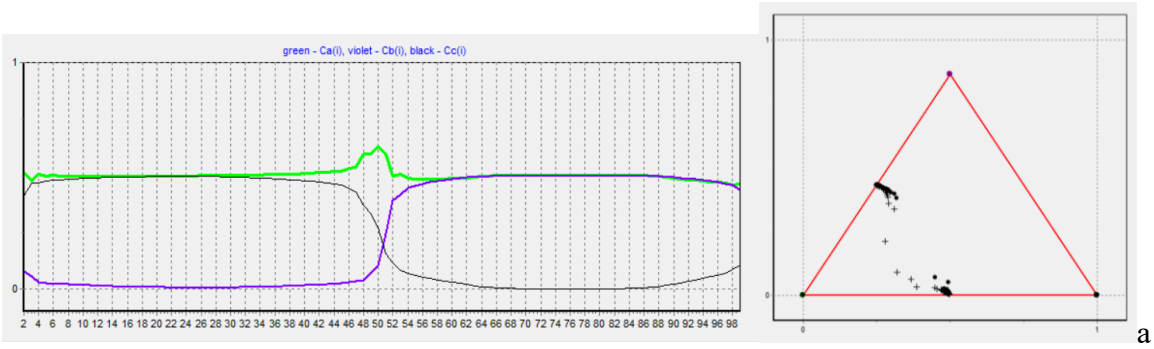
Fig. 5. Interaction between two ordered phases AB and CB.
(a) Concentration profiles after intermediate annealing.
(b) Concentration profiles after long annealing.

Для кращого розуміння рівноваг між сплавами A-C і фазами AB та CB ми розглянули дифузійну пару впорядкована фаза (AB) - впорядкована фаза (AC) – рис.6. Як бачимо, на завершальній стадії отримуємо стрибок по коноді, який відповідає якісній очікуваній картині на рис.1.

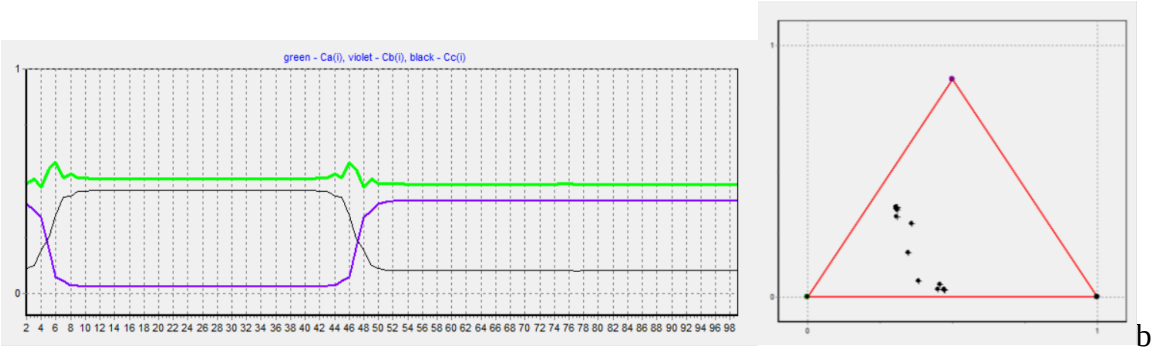
Далі ми перейшли до моделювання дифузійних пар між сплавами AC різного початкового складу, з одного боку, і чистим B з іншого боку. На рисунках 7-9 зображені дифузійні траєкторії в проміжний момент часу і (на рис. 7) після вичерпання початкових компонентів.

Дифузійна траєкторія на рис.8 має характерну S-форму і «стрибає» в основному вздовж конод двофазних областей – дякі (малочисельні) проміжні точки на конодах є наслідком дискретності схеми і усереднення по трьом площинам.

“Біфуркація” дифузійної траєкторії на рис. 9 обумовлена (1) симетрією початкового стану, (2) тим, що внаслідок періодичних граничних умов ми маємо справу фактично з двома дифузійними парами.



a



b

Рис.6. Концентраційні профілі та дифузійні траєкторії для проміжного (a) і для довгого (b) часу відпалу пари «впорядкована фаза (AB)- впорядкована фаза (AC)»
Fig.6. Concentration profiles and diffusion trajectories for intermediate (a) and long (b) time of annealing of the pair "ordered phase (AB) - ordered phase (AC)"

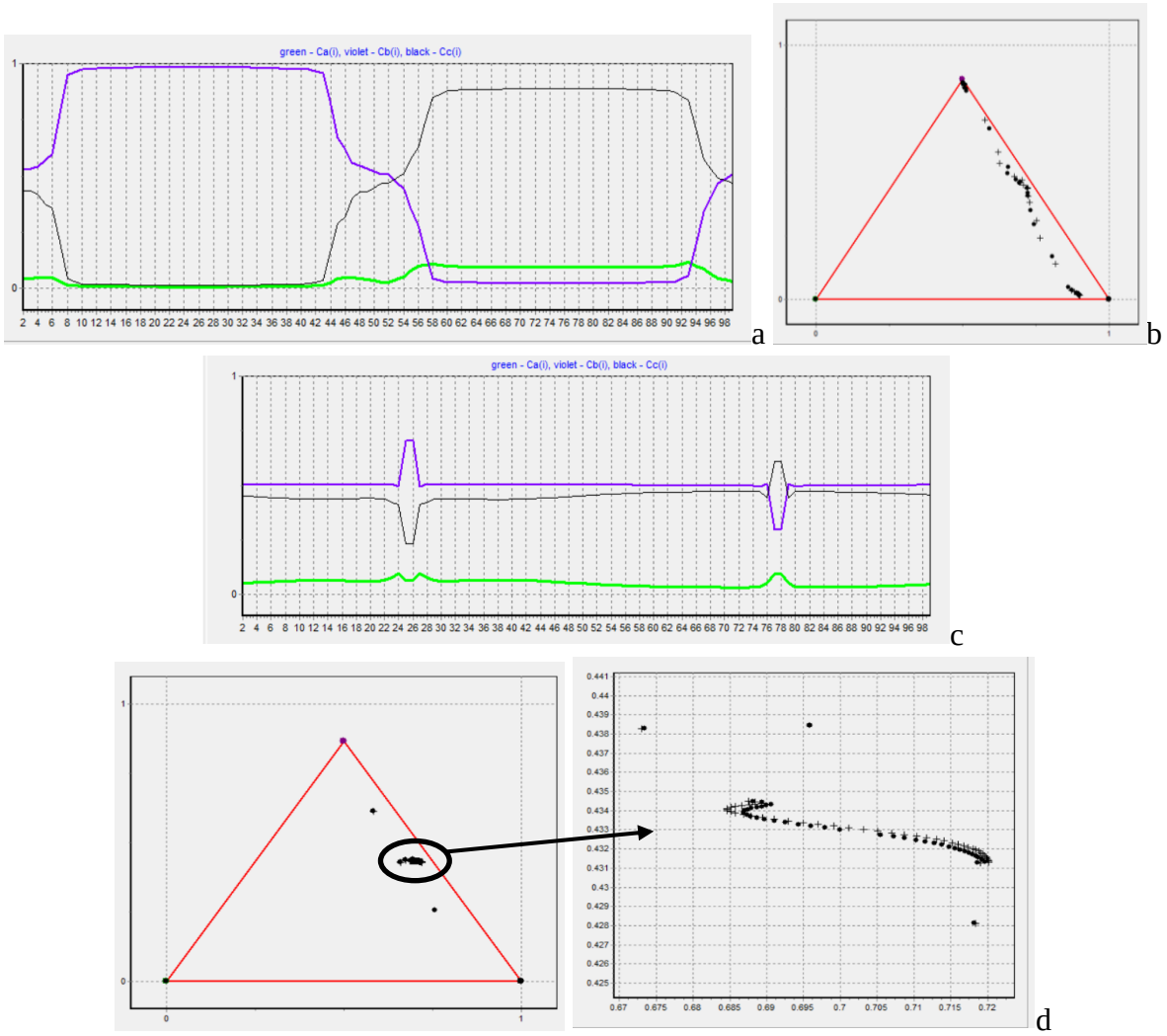


Рис.7. Дифузійні профілі (a) і дифузійна траєкторія (b) пари (0.1A,0.9C)-B після часу відпалу, поки ще є вихідні компоненти, та дифузійні профілі (c) і дифузійна траєкторія (d) після довгого часу відпалу.

Fig.7. Diffusion profiles (a) and diffusion trajectory (b) of the diffusion couple (0.1A, 0.9C)–B after annealing time while source components are still available, and diffusion profiles (c) and diffusion trajectory (d) after long annealing time.

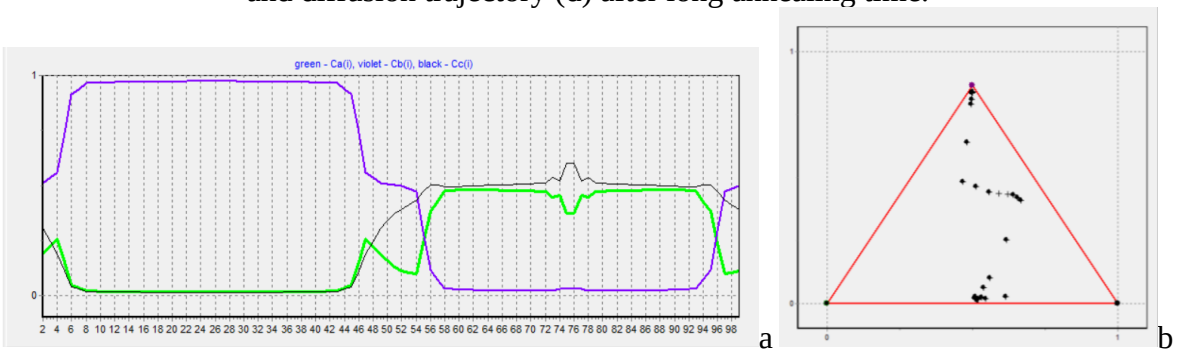


Рис.8. Дифузійні профілі (a) і дифузійна траєкторія (b) після часу відпалу пари (0.45A,0.55C)-B, поки ще є вихідні компоненти.

Fig.8. Diffusion profiles (a) and diffusion trajectory (b) after the time of annealing of the diffusion couple (0.45A, 0.55C)–B, while there are still source components.

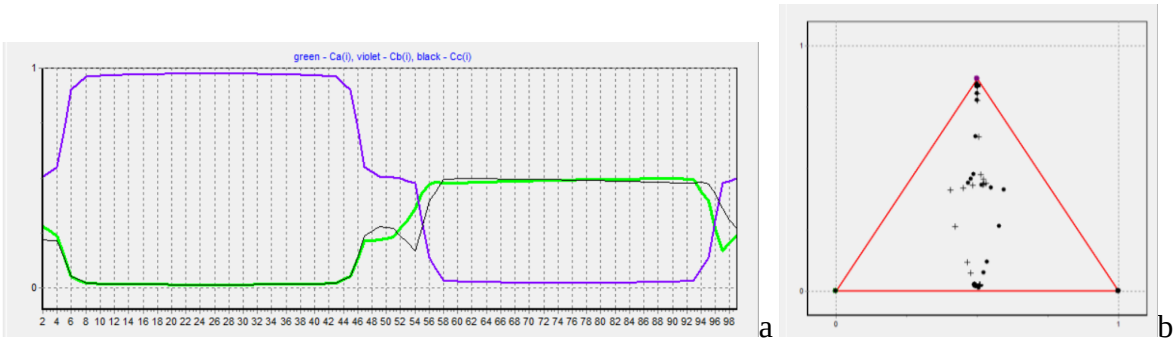


Рис.9. Дифузійні профілі (a) і дифузійна траєкторія (b) пари (0.5A,0.5C)-B після часу відпалу, поки ще є вихідні компоненти.
Fig.9. Diffusion profiles (a) and diffusion trajectory (b) of the diffusion couple (0.5A, 0.5C)–B after annealing time, while there are still source components.

4. Висновки

Таким чином, середньопольова кінетична модель дифузії, реакцій , впорядкування та конкуренції фаз узагальнена на випадок потрійного сплаву з проміжними фазами. При заданих параметрах вводити шум поки що не прийшлось – всі необхідні проміжні фази зароджувались і росли і без шумових доданків. Отримані результати свідчать про вплив третього компоненту на вибір дифузійного шляху. Далі планується дослідити вплив асиметрії енергетичних параметрів на діаграму стану, вибір шляху і кінетику росту фаз. Крім того, необхідно перейти до ГЦК-решіток, які дозволяють отримувати значно багатший фазовий склад дифузійної зони.

Список використаної літератури:

1. Гуров К. П., Карташкин Б. А., Угасте Ю. Э. Взаимная диффузия в многофазных металлических системах. – Наука, 1981.

2. Mayer J. W., Poate J. M., Tu K. N. Thin films and solid-phase reactions // Science. – 1975. – Vol. 190. – №. 4211. – P. 228-234.

3. Paul A., Laurila T., Vuorinen V., Divinski S. V. Thermodynamics, diffusion and the Kirkendall effect in solids. – Cham: Springer International Publishing, 2014. – P. 115-139. Режим доступу: https://doi.org/10.1007/978-3-319-07461-0

4. Gusak A. M. Diffusion-controlled solid state reactions: in alloys, thin-films, and nanosystems / A. M. Gusak, T. V. Zaporozhets, Y. O. Lyashenko, S. V. Kornienko, M. O. Pasichnyy, A. S. Shirinyan. – John Wiley & Sons, 2010. – Режим доступу: ISBN 978-3-527-40884-9.

5. Gusak A., Storozhuk N. Diffusion-Controlled Phase Transformations in Open Systems // Handbook of Solid State Diffusion, Volume 2. – Elsevier, 2017. – P. 37-100. Режим доступу: https://doi.org/10.1016/B978-0-12-804548-0.00002-5

6. Гусак А. М., Ляшенко Ю. А. Особенности решений уравнений массопереноса в двухфазных зонах тройных систем // Инженерно-физический журнал (АН БССР). – 1990. – Т. 59, № 2. – С.286-291.

7. Гусак А. М. Феноменологическое описание диффузии в двухфазной зоне тройной системы // Журнал физической химии (АН СССР). – 1990. – Т. 64, № 2.– С. 510-513.

8. Danielewski M. et al. Model of diffusive interaction between two-phase alloys with explicit fine-tuning of the morphology evolution // Acta Materialia. – 2016. – Vol. 108.– P. 68-84. Режим доступу: https://doi.org/10.1016/j.actamat.2016.02.018

9. Yang S. C., Ho C. E., Chang C. W., Kao C. R. Strong Zn concentration effect on the soldering reactions between Sn-based solders and Cu. // Journal of materials research. – 2006. – Vol. 21(10).– P. 2436-2439. Режим доступу: https://doi.org/10.1557/jmr.2006.0320

10. Liu Y., Pu L., Gusak A., Zhao X., Tan C., Tu K. N. Ultra-thin intermetallic compound formation in microbump technology by the control of a low Zn concentration in solder // Materialia. – 2020. – Vol. 12.– P. 100791.
Режим доступу: https://doi.org/10.1016/j.mtla.2020.100791

11. Storozhuk N. V., Sopiga K. V., Gusak A. M. Mean-field and quasi-phase-field models of nucleation and phase competition in reactive diffusion // Philosophical Magazine. – 2013. – Vol. 93(16). – P. 1999-2012.
Режим доступу: https://doi.org/10.1080/14786435.2012.746793

12. Erdélyi Z., Pasichnyy M., Bezpalchuk V., Tomán J. J., Gajdics B., Gusak A. M. Stochastic kinetic mean field model // Computer Physics Communications.– 2016. – Vol. 204. – P. 31-37. Режим доступу: https://doi.org/10.1016/j.cpc.2016.03.003

13. Bezpalchuk V. M., Kozubski R., Gusak A. M. Simulation of the tracer diffusion, bulk ordering, and surface reordering in fcc structures by kinetic mean-field method // Успехи физики металлов. – 2017. — Vol. 18, № 3. — P. 205-233. Режим доступу: https://doi.org/10.15407/ufm.18.03.205

14. Pasichna V. M., Storozhuk N. V., Gusak A. M. Incubation Time at Decomposition of Solid Solution–Stochastic Kinetic Mean-Field Versus Monte Carlo simulation // Ukrainian Journal of Physics. – 2020. – Vol. 65. – №. 6. – P. 488-499. Режим доступу: http://eprints.cdu.edu.ua/id/eprint/4290

15. Gusak A., Zaporozhets T., Storozhuk N. Phase competition in solid-state reactive diffusion revisited—Stochastic kinetic mean-field approach // The Journal of chemical physics. – 2019. – V. 150, № 17. – P. 174109. – Режим доступу: https://doi.org/10.1063/1.5086046

16. Pasichna V., Gusak A. Alternative algorithms for simultaneous modeling of ordering and intermediate compound growth during reactive diffusion //Computational Materials Science. – 2021. – Vol. 187. – P. 110114.
Режим доступу: https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2020.110114

17. Kodentsov A. A., Bastin G. F., Van Loo F. J. J. The diffusion couple technique in phase diagram determination.// Journal of alloys and compounds. – 2001. – Vol. 320(2). – P. 207-217. Режим доступу: https://doi.org/10.1016/S0925-8388(00)01487-0

References:

1. Гуров К. П., Карташкин Б. А., Угасте Ю. Э. (1981) *Взаимная диффузия в многофазных металлических системах*. Наука.

2. Mayer J. W., Poate J. M., Tu K. N. (1975) Thin films and solid-phase reactions. *Science*. 190 (4211), 228-234.

3. Paul A., Laurila T., Vuorinen V., Divinski S. V. (2014). *Thermodynamics, diffusion and the Kirkendall effect in solids.* Cham: Springer International Publishing, 115-139.

4. Gusak A. M., Zaporozhets T. V., Lyashenko Y. O., Kornienko S. V., Pasichnyy M. O., Shirinyan A. S. (2010). *Diffusion-controlled solid state reactions: in alloys, thin-films, and nanosystems*. John Wiley & Sons.

5. Gusak A., Storozhuk N. (2017) *Diffusion-Controlled Phase Transformations in Open Systems. Handbook of Solid State Diffusion.* Elsevier. 2, 37-100.

6. Гусак А. М., Ляшенко Ю. А. (1990) Особенности решений уравнений массопереноса в двухфазных зонах тройных систем. *Инженерно-физический журнал (АН БССР),* 59 (2), 286-291.

7. Гусак А. М. (1990) Феноменологическое описание диффузии в двухфазной зоне тройной системы. *Журнал физической химии (АН СССР)*, 64(2), 510-513.

8. Danielewski M. et al. (2016) Model of diffusive interaction between two-phase alloys with explicit fine-tuning of the morphology evolution. *Acta Materialia*. 108, 68-84.

9. Yang S. C., Ho C. E., Chang C. W., Kao C. R. (2006). Strong Zn concentration effect on the soldering reactions between Sn-based solders and Cu. *Journal of materials research,* 21(10), 2436-2439.

10. Liu Y., Pu L., Gusak A., Zhao, X., Tan C., Tu K. N. (2020). Ultra-thin intermetallic compound formation in microbump technology by the control of a low Zn concentration in solder. *Materialia*, 12, 100791.

11. Storozhuk N. V., Sopiga K. V., Gusak A. M. (2013). Mean-field and quasi-phase-field models of nucleation and phase competition in reactive diffusion. *Philosophical Magazine*, 93(16), 1999-2012.

12. Erdélyi Z., Pasichnyy M., Bezpalchuk V., Tomán J. J., Gajdics B., Gusak A. M. (2016). Stochastic kinetic mean field model. *Computer Physics Communications,* 204, 31-37.

13. Bezpalchuk V. M., Kozubski R., Gusak A. M. (2017) Simulation of the tracer diffusion, bulk ordering, and surface reordering in fcc structures by kinetic mean-field method. *Успехи физики металлов*, 13 (3), 205.

14. Pasichna V. M., Storozhuk N. V., Gusak A. M. (2020) Incubation Time at Decomposition of Solid Solution–Stochastic Kinetic Mean-Field Versus Monte Carlo simulation. *Ukrainian Journal of Physics*, 65(6), 488-499.

15. Gusak A., Zaporozhets T., Storozhuk N. (2019) Phase competition in solid-state reactive diffusion revisited – Stochastic kinetic mean-field approach. *The Journal of chemical physics*, 150 (17), 174109.

16. Pasichna V., Gusak A. (2021) Alternative algorithms for simultaneous modeling of ordering and intermediate compound growth during reactive diffusion. *Computational Materials Science*, 187, 110114.

17. Kodentsov A. A., Bastin G. F., Van Loo F. J. J. (2001). The diffusion couple technique in phase diagram determination. *Journal of alloys and compounds*, 320(2), 207-217.

N. V. Storozhuk
Candidate of physical and mathematical sciences,
The Bohdan Khmelnytsky National University of Cherkasy, Cherkasy, Ukraine,
nadushenka@ukr.net

A. M. Gusak
Doctor of physical and mathematical sciences, professor,
Honored Worker of Science and Technology of Ukraine
Department of Physics of Educational-Scientific Institute of Informational and Eduational Technologies,
The Bohdan Khmelnytsky National University of Cherkasy, Cherkasy, Ukraine,
amgusak@ukr.net

APPLICATION OF SKMF METHOD TO MODELING OF INTER- AND REACTIVE DIFFUSION IN TERNARY ALLOYS

Summary. *The processes of interdiffusion in alloys with the formation and growth of intermediate phases is an urgent task of physical materials science, the solution of which is necessary to predict the properties of compounds between materials, in particular, in microelectronics. For binary alloys the basic principles of solving such problems have already been defined, but for multicomponent alloys and, in particular, ternary alloys – the problem remains ambiguous and very far from being solved. In particular, there is the problem of ambiguous choice of diffusion paths in the concentration triangle, the problem of formation or non-formation of two-phase zones, the problem of instability of diffusion paths in two-phase zones, etc. From an applied point of view, adding a third component to a binary alloy is a known way to optimize the bonding properties of materials. In particular, adding a few percent of zinc to a tin-based solder can significantly reduce the porosity of brazed joints.*

The recently developed author's modification of the mean-field kinetic method for describing the reaction diffusion and competition of intermediate phases is generalized from the case of binary systems on ternary alloys (solid solutions, ordered intermediate phases and two-phase zones). This takes into account the interaction between atoms in the two coordination areas shells. To test the method, the temperature and interaction energies are chosen so that on the two sides (AB and BC) of the concentration triangle there is one intermediate ordered phase with a narrow interval of homogeneity, and on the third side (AC) there is complete solubility. The choice of the diffusion path and the kinetics of mutual diffusion, ordering and growth of intermediate phases, depending on the composition of the original diffusion couple are studied.

At the given parameters it was not necessary to add noise yet – all necessary intermediate phases were born and grew and without noise additions. The obtained results indicate the influence of the third component on the choice of the diffusion path. Next, it is planned to investigate the effect of asymmetry of energy parameters on the state diagram, path selection and phase growth kinetics. In addition, it is necessary to move to fcc lattices, which allow to obtain a much richer phase composition of the diffusion zone.

Keywords*:* diffusion, phase formation, growth, ordering, state diagrams, ternary systems, diffusion trajectories, phase competition

Одержано редакцією 18.07.2021
Прийнято до друку 23.08.2021