

СТРУКТУРА, ФАЗОВЫЕ ПРЕВРАЩЕНИЯ И ДИФфуЗИЯ

УДК 536.912

АТОМИСТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ОСОБЕННОСТЕЙ ФОРМИРОВАНИЯ МИКРОСТРУКТУРЫ БИНАРНЫХ СИСТЕМ

© 2024 г. Р. М. Кичигин^а, П. В. Чирков^{а, *}, А. В. Караваев^а, В. В. Дремов^а

^аРоссийский Федеральный Ядерный Центр — Всероссийский Научно-Исследовательский
Институт Технической Физики им. академика Е.И. Забабахина, Снежинск, 456770 Россия

*e-mail: chirkovpv@vniitf.ru

Поступила в редакцию 20.07.2024 г.

После доработки 20.08.2024 г.

Принята к публикации 22.08.2024 г.

Осуществлен выбор и верификация моделей межатомного взаимодействия для молекулярно-динамического моделирования кристаллизации из расплава применительно к бинарным системам со значительным отличием температур солидуса и ликвидуса на примере сплавов Cu–Ni и Mo–Ni. Выполнена верификация используемых потенциалов на основе термодинамических расчетов равновесных параметров плавления и по доступным экспериментальным данным. Определены условия образования, характеристики и особенности эволюции кристаллической структуры в процессе затвердевания бинарных систем и сплавов со значительным отличием температур солидуса и ликвидуса. Проведены крупномасштабные атомистические расчеты перераспределения компонент бинарного сплава Mo–Ni при его кристаллизации из расплава.

Ключевые слова: бинарные сплавы, Cu–Ni, Mo–Ni, солидус, ликвидус, классическая молекулярная динамика, межатомные потенциалы взаимодействия

DOI: 10.31857/S0015323024110074, **EDN:** IMJWES

ВВЕДЕНИЕ

Механические и инженерные характеристики конструкционных материалов в значительной мере определяются микроструктурой материала: наличием инородных включений, структурой дефектов кристаллической решетки и т.п. Именно условия, в которых происходит процесс затвердевания, оказывают существенное влияние на фазовый состав, зеренную структуру, плотность дефектов и другие микроскопические параметры. При затвердевании бинарных систем и сплавов могут проявляться дополнительные особенности роста кристаллической фазы, связанные с отличием температур солидуса и ликвидуса, отличиями базовых кристаллических структур, эвтектидными распадами.

Одним из эффективных современных расчетно-теоретических методов детального исследования процессов кристаллизации материалов на микроуровне является атомистическое моделирование [1–4]. Классическая Молекулярная Динамика (КМД) для описания взаимодействия между частицами оперирует межатомными полуэмпирическими потенциалами и

способна включать в расчет до нескольких миллиардов атомов при использовании массового распараллеливания на современных суперкомпьютерах, позволяя тем самым моделировать различные, достаточно представительные с точки зрения описания реальных физических явлений и процессов, системы. Однако в отличие от первопринципных методов атомистического моделирования используемые в КМД потенциалы межатомного взаимодействия содержат ряд параметров, которые подбираются из условия наилучшего воспроизведения в расчетах экспериментальных данных и результатов первопринципных расчетов. Для моделирования металлов и металлических сплавов наибольшее распространение получили потенциалы межатомного взаимодействия, построенные на основе моделей погруженного атома (EAM — Embedded Atom Model и MEAM — Modified Embedded Atom Model) [5–7]. В последние несколько лет бурное развитие получил подход по разработке потенциалов для КМД с использованием алгоритмов машинного обучения. В таком подходе потенциалы для описания межатомных взаимодействий строятся не в виде физически обоснованной

функциональной зависимости и подбора параметров для нее, а в виде набора (часто весьма большого) простых дескрипторов. Построенный таким образом потенциал с помощью алгоритмов машинного обучения параметризуется в основном с учетом результатов первопринципных расчетов (используются энергетические, силовые характеристики моделируемых ансамблей и отдельных частиц), а также наборов имеющихся целевых экспериментальных данных. Использование таких многопараметрических машинно-обученных потенциалов позволяет с высокой точностью приближать результаты КМД-расчетов к первопринципным, при этом возможно проводить расчеты для намного больших по размерам систем [8–14].

Расчетно-теоретическое исследование кинетики фазового перехода, механизмов и особенностей формирования микроструктуры при затвердевании бинарных систем со значительным отличием температур солидуса и ликвидуса является главной целью настоящей работы. Было рассмотрено две бинарные металлические системы: Cu–Ni и Mo–Ni, принципиально отличающиеся видом фазовой диаграммы. КМД-расчеты проведены с помощью программного комплекса LAMMPS [16]. Анализ структуры виртуальных образцов и визуализация результатов выполнены с применением средств программного комплекса визуализации OVITO [17, 18]. Для определения типа атомной структуры использован метод Polyhedral Template Matching (PTM) [19].

МЕТОДИКА МОДЕЛИРОВАНИЯ. ПОТЕНЦИАЛЫ МЕЖАТОМНОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

Широко известно, что результаты, получаемые в КМД-моделировании, в значительной мере зависят от выбора используемой в конкретных расчетах модели межатомного взаимодействия, т.н. межатомного потенциала. Особенно сильно это проявляется в случае, когда необходимо корректное воспроизведение свойств различных фаз, а также кривых равновесия между ними. Корректное и подробное описание термодинамики и, в частности, фазового поведения многокомпонентных систем является одной из основных задач классической молекулярной динамики и служит важным критерием, позволяющим оценивать “качество” используемых потенциалов межатомного взаимодействия.

Для определения температуры плавления выполнен расчет термодинамических потенциалов Гиббса для кристалла и расплава методом неравновесного термодинамического интегрирования, реализация которого для LAMMPS была представлена в [20]. Суть данного метода

заключается в выполнении непрерывного перехода во время КМД-расчета от модельного гамильтониана, описываемого рассматриваемым межатомным потенциалом в состоянии с известным термодинамическим потенциалом [21]. Для кристаллических фаз удобно выполнять переход в состояние, описываемое гармоническим кристаллом Эйнштейна, а для расплавов — в идеальный газ. Процесс непрерывного изменения потенциала взаимодействия не является термодинамически обратимым, однако, как было показано в работе [20], при должном выборе времени перехода можно уменьшить расчетные погрешности до уровня менее 1 мэВ/атом. В настоящей работе для достижения данного уровня точности расчета свободной энергии использовали расчетные суперячейки из 108 000 атомов для Cu и Ni в ГЦК и жидкой фазах, а для Mo размеры систем составляли 128 000 атомов. Время перехода от исследуемого потенциала к модельному гамильтониану во всех расчетах составляло 200 пс с шагом интегрирования по времени 1 фс.

Система Cu–Ni является безэвтектидной бинарной системой с неограниченной растворимостью компонент друг в друге при повышенных температурах (выше 640 К) [22]. И чистая медь, и чистый никель при нулевом давлении во всем диапазоне температур вплоть до плавления имеют ГЦК-кристаллическую структуру. Температура плавления чистой меди при атмосферном давлении составляет 1357 К, чистого никеля — 1728 К [23]. Наибольшая разница температур солидуса и ликвидуса наблюдается для состава 50/50 и составляет ~50 К. Для КМД-моделирования сплавов Cu–Ni был использован межатомный ЕАМ-потенциал [24]. Для целей настоящей работы особенно важно, чтобы потенциал хорошо воспроизводил свойства жидкостей при температурах, близких к температуре плавления. В табл. 1 представлены температура плавления $T_{пл}$, скрытая теплота плавления $\Delta H_{пл}$, а также плотности расплава и ГЦК-фазы для Cu, Ni. Видно, что использованный потенциал ЕАМ Cu–Ni неплохо воспроизводит экспериментальные данные [23] для чистых компонент.

Из-за отличия базовых кристаллических структур (ОЦК для Mo и ГЦК для Ni), сильно отличающихся температур плавления чистых фаз молибдена (2896 К) и никеля (1728 К), а также ограниченной растворимости никеля в молибдене (~ 2 ат. %) сплавы молибдена с никелем (до 50 ат. % Ni) демонстрируют эвтектидный распад с очень большой разностью температур солидуса и ликвидуса [22]. Поэтому данная бинарная система очень интересна для КМД-моделирования с точки зрения описания особенностей микро-

Таблица 1. Параметры фазового перехода кристалл–расплав в системе Cu–Ni и Mo–Ni. Сравнение результатов КМД-расчетов с экспериментальными данными [23], $T_{пл}$ — температура плавления, $\Delta H_{пл}$ — скрытая теплота плавления, $\Delta V_{пл}/V_{ТВ}$ — изменение объема при плавлении, $\rho_{пл}^{ТВ}$ и $\rho_{пл}^{ж}$ плотности твердой фазы и жидкости в точке плавления

Металл	$T_{пл}, K$	$\Delta H_{пл}, \text{кДж/кг}$	$\Delta V_{пл}/V_{ТВ}, \%$	$\rho_{пл}^{ТВ}, \text{кг/м}^3$	$\rho_{пл}^{ж}, \text{кг/м}^3$
Cu (эксп.)	1358	204	+4.5	8361	8000
Ni (эксп.)	1728	298	+4.1	8100	7850
Mo (эксп.)	2890	378	+6.2	9665	9100
Cu (EAM)	1386	194	+4.86	8424	8043
Ni (EAM)	1756	302	+5.16	8392	7980
Mo (SNAP)	3415	570	+8.6	9578	8819
Ni (SNAP)	1763	385	+6.77	8308	7781

структуры жидкости и формирования микро-структуры кристаллов при затвердевании.

При выборе потенциала межатомного взаимодействия для системы Mo–Ni с ОЦК-решеткой (на фазовой диаграмме со стороны молибдена) наш выбор пал на недавно разработанный потенциал SNAP (Spectral Neighbor Analysis Potential) [25, 26]. Данный потенциал относится к потенциалам, полученным методом машинного обучения. Для системы Mo–Ni были проведены расчеты параметров плавления для чистых элементов, результаты которых представлены в табл. 1. Температура плавления для молибдена оказалась завышена относительно экспериментальных данных на 525 K (18%), в то время как для никеля $T_{пл}$ воспроизводится достаточно точно. Полученные данные наглядно демонстрируют тот факт, что температура плавления материала является достаточно сложной физической величиной, определяемой динамикой атомов в различных фазах. Кроме того, неточность расчета наблюдаемых характеристик с помощью машинно-обучаемых потенциалов может быть обусловлена оптимизацией параметров первопринципных расчетов (выбор обменно-корреляционных функционалов, псевдопотенциалов, параметров обрезки и т.п.). Поэтому, несмотря на достаточно сложный вид рассматриваемого потенциала и большое количество данных первопринципных расчетов, использованных при оптимизации, воспроизвести такие свойства вещества, как точки фазовых превращений, оказывается невозможно без дополнительной подгонки параметров.

РАСЧЕТ ФАЗОВЫХ ДИАГРАММ БИНАРНЫХ СИСТЕМ

Для определения кривых солидуса и ликвидуса для интересующих нас бинарных систем воспользуемся методом CMI (Compositional Moving

Interface), предложенным в работах [27, 28]. Суть данного метода заключается в возможности определения равновесных концентраций компонент сплава в жидкости и в кристаллической фазе при определенной температуре по отсутствию движения межфазной границы кристалл/жидкость. Рассмотрим алгоритм расчета кривых солидуса и ликвидуса на примере бинарного сплава Cu–Ni. В настоящей работе для расчета использовали относительно небольшие системы размером $12 \times 12 \times 60$ элементарных ячеек, содержащих 34 560 атомов. Контроль давления и температуры осуществляли при помощи термостата и баростата Нозье–Гувера [29, 30]. В начальный момент времени создается двухфазная система, которая состоит полностью из более тугоплавкого компонента (чистого никеля в данном случае) и в твердой, и в жидкой фазах (рис. 1а). Далее в системе случайным образом осуществляли замену атомов никеля на атомы меди с различными концентрациями меди в жидкости и в кристалле. Такие системы с добавленными атомами меди термализовались при интересующей нас температуре, и далее на протяжении 0.5 нс в них контролировали смещение границы кристалл/жидкость. Значения равновесных концентраций меди в жидкости и в кристалле определяли по отсутствию смещения границы на протяжении всего времени моделирования. Отсутствие движения гарантирует, что концентрация меди в кристалле и жидкости не изменяется в результате плавления или роста кристалла. На рис. 1 представлены три возможных варианта поведения межфазной границы кристалл/жидкость в результате моделирования, соответствующие различным перераспределениям атомов меди между жидкостью и кристаллом: б — рост кристалла (недостаток меди в расплаве), в — плавление кристалла (избыток меди в расплаве), г — граница неподвижна, концентрации меди и никеля в кристалле и расплаве находятся в равновесном состоянии. Моделируя

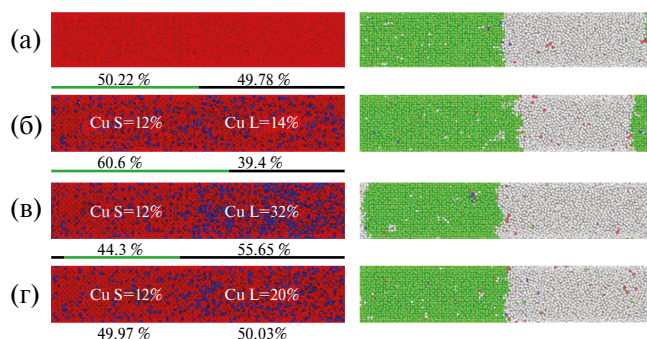


Рис. 1. Схема определения равновесных концентраций веществ в расплаве и ГЦК-кристалле для бинарных систем с помощью СМІ-метода на примере Cu–Ni при температуре $T = 1700$ К. В левой колонке показаны атомы никеля (красным) и меди (синим), в правой колонке — структуры образцов (зеленым цветом — ГЦК-кристалл, серым — жидкость). Строки: а — двухфазная система в начальный момент моделирования; б — рост кристалла при недостатке меди в расплаве; в — плавление кристалла при избытке меди в расплаве; г — граница кристалл/жидкость находится в равновесии.

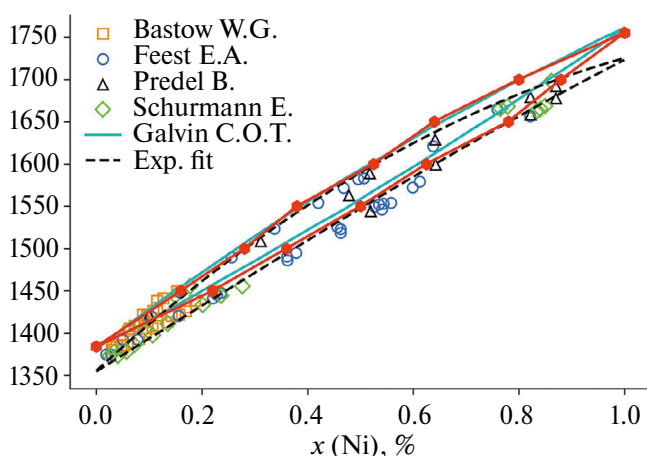


Рис. 2. Бинарная фазовая диаграмма (линии солидуса и ликвидуса) для бинарного сплава Cu–Ni: красная линия с закрашенными шестиугольниками — расчет СМІ-методом (настоящая работа), остальными маркерами показаны результаты экспериментов [31–34]; штриховая линия — аппроксимация совокупности экспериментальных данных; бирюзовые линии — результаты расчетов линии солидуса и ликвидуса СМІ-методом из работы [28].

с шагом в 0.25 – 2 % по концентрациям, мы можем определить такие концентрации, когда смещение межфазной границы не происходит, что и будет соответствовать концентрациям на линиях солидуса и ликвидуса при интересующей нас фиксированной температуре.

С использованием СМІ-метода были определены фазовые диаграммы рассматриваемых бинарных систем. На рис. 2 приведена фазовая диаграмма бинарного сплава Cu–Ni, рассчитанная СМІ-методом, и известные экспериментальные

данные по положению линий солидуса и ликвидуса [31–34]. Полученные результаты с высокой точностью воспроизводят результаты экспериментов. Данная методика позволяет с приемлемой точностью рассчитывать фазовые диаграммы бинарных сплавов даже с относительно небольшой разницей температур солидуса и ликвидуса.

Для бинарной системы Mo–Ni кроме расчета СМІ-методом был проведен альтернативный расчет по определению линий солидуса и ликвидуса. Предлагаемый нами метод расчета параметров равновесия кристалл/жидкость в двухкомпонентных сплавах более затратный по сравнению с СМІ-методом с точки зрения вычислений, но при этом позволяет в значительной степени симитировать процессы, происходящие при кристаллизации бинарных систем в реальных экспериментах. Для этого использовали систему, состоящую из ~ 270 000 атомов (размером ~ $50 \times 10 \times 10$ нм). На первом этапе подготавливали двухфазную систему с межфазной границей кристалл/жидкость. Концентрацию никеля в жидкости задавали равной 14 ат. %, при этом кристалл в начальный момент представлял собой чистый молибден (рис. 1а). Систему поддерживали при нулевом давлении и температуре $T = 2800$ К с использованием термостата Нозье–Гувера [29, 30]. Естественно, что при таких параметрах (давление, температура, концентрации элементов в жидкости и кристалле) такое состояние является неравновесным. Данная температура значительно ниже температуры плавления чистого молибдена (табл. 1) и, соответственно, начинается рост кристаллической фазы. При движении границы часть атомов никеля попадает в растущий ОЦК-кристалл, а часть остается в жидкости. При этом в растущий ОЦК-кристалл встраивается столько атомов никеля, сколько может в нем раствориться при данной температуре (~ 3 %). Избыток никеля остается в расплаве. Так как доля кристалла в системе постепенно увеличивается, то повышается концентрация никеля в расплаве. Процесс движения межфазной границы прекращается, когда концентрация никеля в расплаве достигает равновесного значения, соответствующего точке на линии ликвидуса при данной температуре. На рис. 3 показаны снимки системы на различные моменты моделирования, начиная с начального момента времени $t = 0$, когда в системе есть только “затравка” ОЦК-кристалла из чистого молибдена, до момента остановки межфазной границы ОЦК-кристалл/жидкость $t = 19$ нс, когда в кристалле и жидкости достигаются равновесные концентрации никеля, соответствующие линиям солидуса и ликвидуса. В левом столбце на рис. 3 синим цветом показаны атомы, образующие ОЦК-кристалл, серым — атомы расплава. В правом столбце на рис. 3

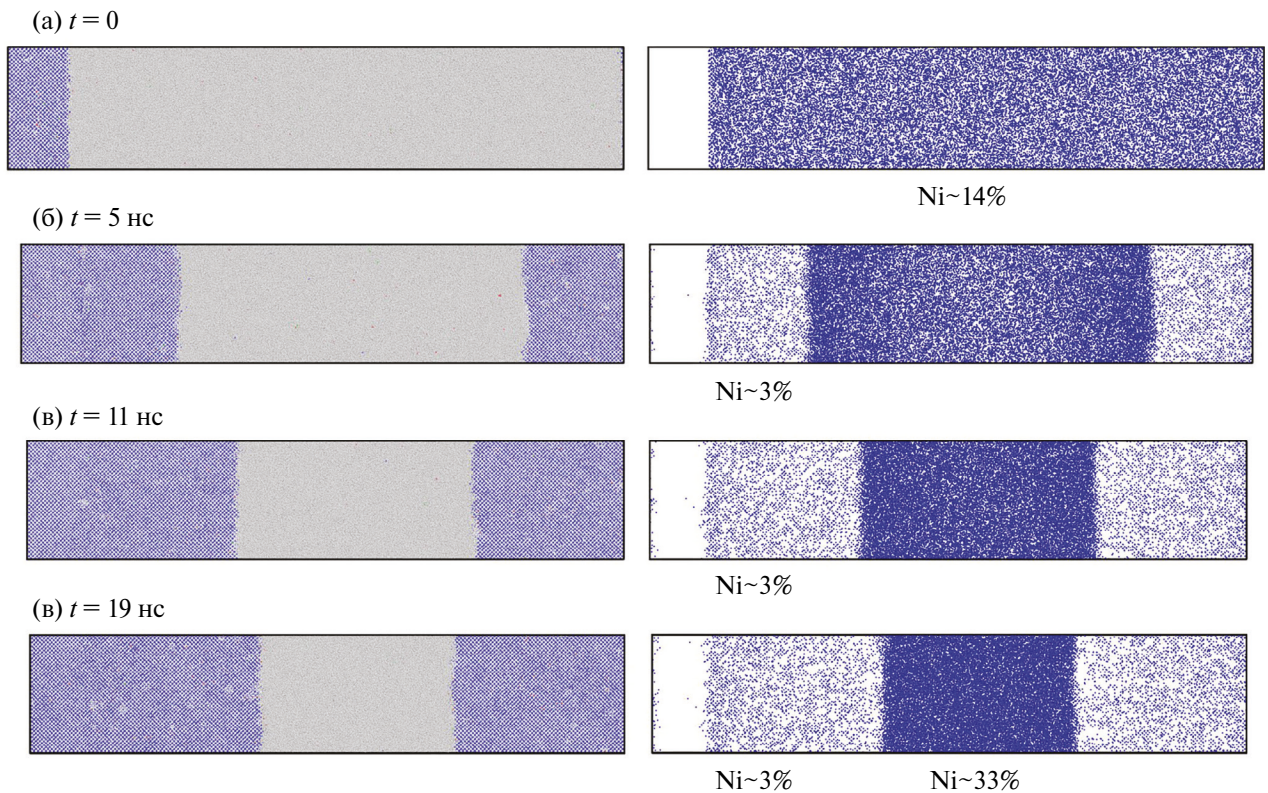


Рис. 3. Движение границы ОЦК-кристалл/жидкость (колонка слева — синим цветом показан ОЦК-кристалл, серым — расплав) и концентрация никеля (колонка справа — синим цветом показаны атомы никеля, атомы молибдена не показаны) в образце на различные моменты времени: а — начало расчета $t = 0$; б — момент времени $t = 5$ нс; в — момент времени $t = 11$ нс; г — момент окончания расчета, соответствующий $t = 19$ нс.

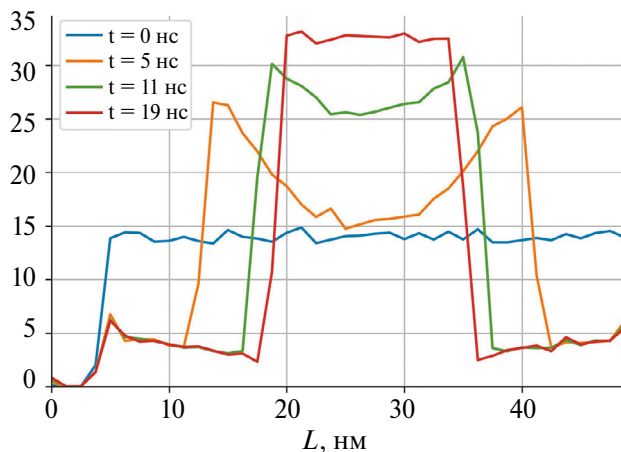


Рис. 4. Профили концентрации никеля в системе вдоль наиболее длинного направления перпендикулярно границе раздела кристалл—жидкость на моменты времени, представленные на рис. 3.

синим цветом показаны атомы никеля, атомы молибдена в правой колонке не показаны. Визуально хорошо видно, что концентрация атомов никеля заметно меняется и в кристалле она устанавлива-

ется на каком-то уровне, при этом избыток атомов никеля вытесняется в расплав.

Количественно это результат по перераспределению атомов никеля между ОЦК-кристаллом и жидкостью более ярко показан на рис. 4. Здесь показаны профили концентрации никеля в системе в те же моменты времени. Локальные пики концентрации на профилях на границе ОЦК-кристалл/жидкость возникают в силу того, что скорость движения межфазной границы оказывается выше, чем скорость направленной диффузии никеля в расплаве. Изменение концентрации никеля в кристалле молибдена от $\sim 5\%$ до $\sim 2.5\%$ связано с уменьшением скорости роста кристалла, как видно на рис. 4, и направленная диффузия никеля в расплаве начинает “успевать” устанавливать равновесную концентрацию на фронте. При полной остановке движения межфазной границы в ее окрестности достигается равновесие концентраций никеля в ОЦК-кристалле и расплаве. Эти равновесные значения концентраций соответствуют точкам на линиях солидуса и ликвидуса при данной температуре.

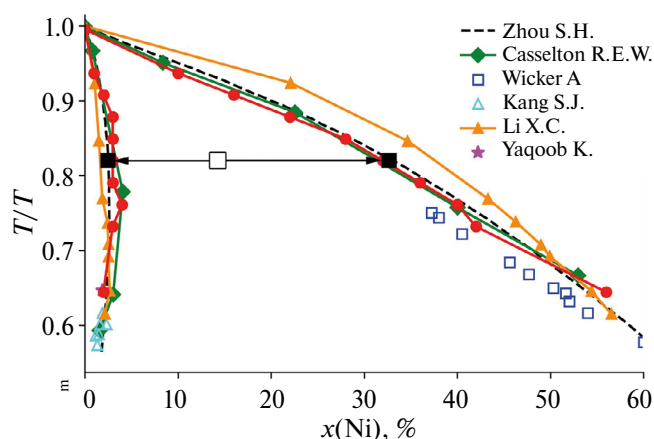


Рис. 5. Бинарная фазовая диаграмма (линии солидуса и ликвидуса) для системы Mo–Ni: штриховая линия — результаты термодинамических расчетов методикой CALPHAD [35], символы — экспериментальные данные [36–39], оранжевая линия — результаты КМД моделирования со SNAP потенциалом, полученные в работе [26], красная линия — КМД-расчет СМІ-методом (настоящая работа), черный незакрашенный квадрат — начальная концентрация никеля в расплаве, черные закрашенные квадраты — равновесные концентрации никеля в ОЦК-кристалле и расплаве, полученные методом роста кристалла.

Результаты расчетов линий солидуса и ликвидуса для бинарной системы Mo–Ni СМІ методом представлены на рис. 5. Можно видеть, что используемый SNAP-потенциал количественно достаточно точно воспроизводит фазовую диаграмму, полученную с помощью термодинамических расчетов по методике CALPHAD [35], и согласуется с результатами экспериментов из работ [36–39]. На рис. 5 представлены также результаты моделирования СМІ-методом со SNAP-потенциалом, полученные в работе [26]. Черными закрашенными квадратными маркерами обозначены равновесные концентрации, полученные в результате моделирования движения межфазной границы кристалл/жидкость, предложенными нами методом. Можно видеть, что результаты КМД-расчетов предложенным нами методом и СМІ-методом для одного и того же межатомного потенциала практически совпадают.

ПРЯМОЕ КРУПНОМАСШТАБНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ФОРМИРОВАНИЯ МИКРОСТРУКТУРЫ БИНАРНОГО СПЛАВА ЗА СЧЕТ ПЕРЕРАСПРЕДЕЛЕНИЯ КОМПОНЕНТ ПРИ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ ИЗ РАСПЛАВА

В настоящем разделе приводятся результаты крупномасштабного КМД-моделирования перераспределения компонент бинарного сплава Mo–

Ni при его кристаллизации из расплава в квазидвумерной геометрии, т.е. в такой постановке, где размер вдоль одного направления значительно меньше вдоль двух других. В КМД-расчете со SNAP-потенциалом использована система с размерами $\sim 51 \text{ нм} \times 51 \text{ нм} \times 5.1 \text{ нм}$ в периодических граничных условиях во всех направлениях, состоящая из 819 200 атомов. Как и в предыдущем разделе, среднее содержание никеля в системе задавали равным 14 ат. %. С помощью термостата и баростата Нозье–Гувера [29, 30] в системе поддерживали требуемую температуру и давление, близкое к нулю. На начальном подготовительном этапе система была прогрета значительно выше температуры плавления молибдена и получен расплав с равномерным распределением атомов никеля в нем. Далее система была термализована при нулевом давлении и температуре $T = 2800 \text{ К}$. В расплаве были искусственно созданы три относительно небольших ($\sim 2.5 \text{ нм}$ в диаметре) квазисферических зародыша ОЦК-фазы чистого молибдена (рис. 6). Так как выбранные параметры системы (температура и концентрация никеля в расплаве) находятся на фазовой диаграмме значительно ниже линии ликвидуса, то зародыши чистого ОЦК-молибдена начинают постепенно расти. Из-за значительного отличия линий солидуса и ликвидуса при их росте происходит перераспределение компонент сплава, подобно тому, как это было в квазидвумерном случае. При достижении равновесия концентраций компонент в кристалле и в расплаве, соответствующих значениям концентраций на линиях солидуса и ликвидуса при данной температуре, рост кристаллитов прекращается. На рис. 6 представлены состояния системы (показаны только атомы никеля, причем в закристаллизовавшихся областях содержание никеля заметно ниже) на разные моменты времени (разные этапы роста ОЦК-кристаллитов).

На рис. 6 видно, как происходит перераспределение никеля, а также замедление роста кристаллитов. Если в первые 2 нс расчета кристаллиты быстро увеличиваются в размерах, то с 6-й по 10-ю наносекунду их размеры практически не меняются. На рис. 6 также видны локальные области повышенной концентрации Ni, непосредственно прилегающие к поверхностям раздела расплава и кристаллитов (рис. 7а). Эти области повышенной концентрации образованы “лишним” никелем, который не растворился в растущих ОЦК-зернах и не успел из-за медленной по сравнению со скоростью роста зерна диффузии перераспределиться в расплаве. Изначально зерна растут равномерно во все стороны, однако при “встрече” двух растущих зерен повышенные концентрации никеля пе-

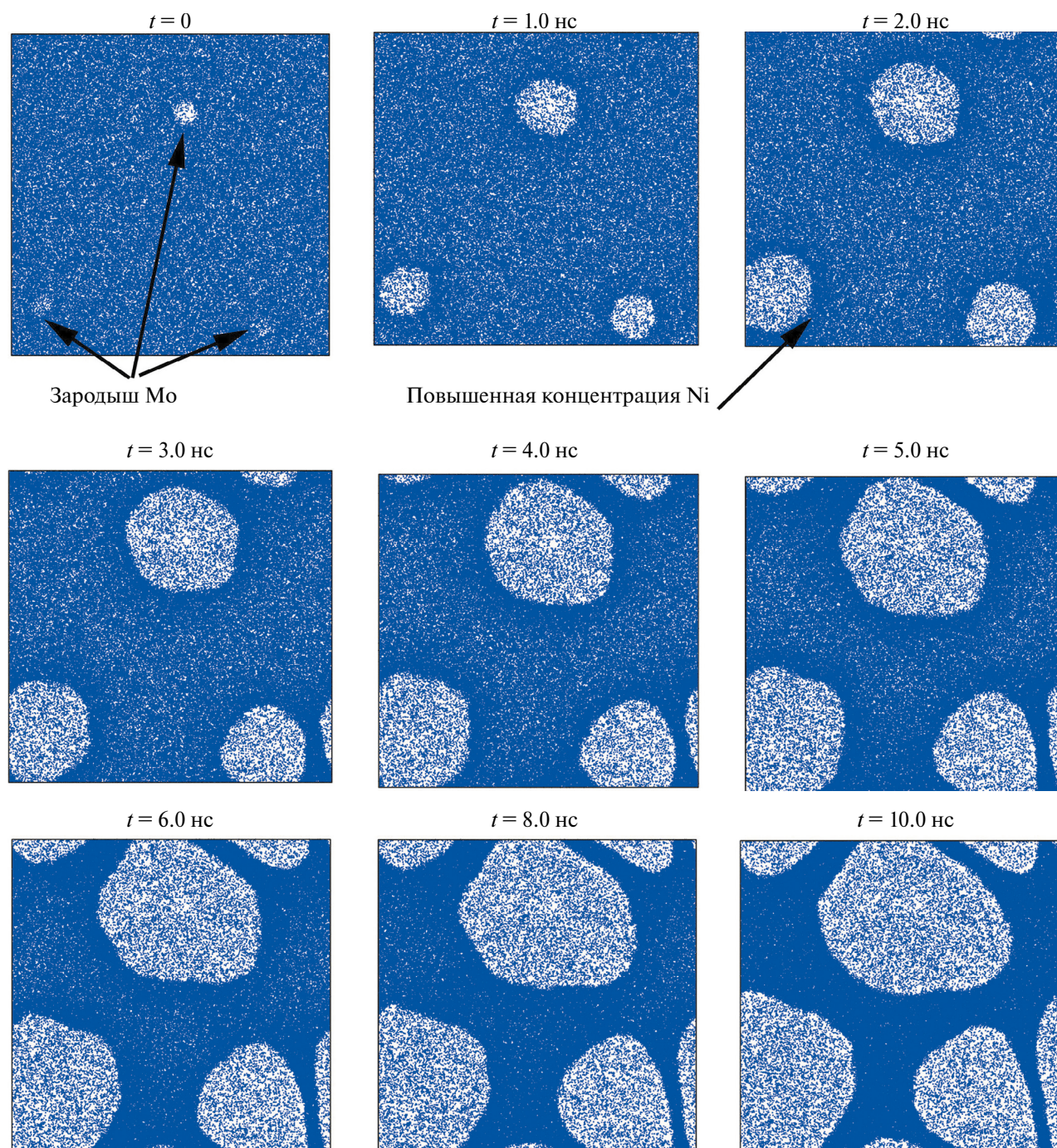


Рис. 6. Состояния системы (показаны только атомы никеля; в закристаллизовавшихся областях содержание никеля заметно ниже) на разные моменты времени (разные этапы роста ОЦК-структуры) КМД-моделирования роста ОЦК-кристаллитов в сплаве Мо с 14 ат. % Ni при температуре $T = 2700$ К.

ред их межфазными границами “не дают” зернам расти навстречу друг другу. При этом рост кристаллитов продолжается в других направлениях, в которых “лишним” атомам Ni есть куда диффундировать. По истечении времени после окончания роста кристаллитов области повышенного содержания никеля перед границами

раздела кристалла и жидкости рассасываются за счет диффузии, и концентрация никеля в расплаве выравнивается (рис. 76), достигая равновесного значения на линии ликвидуса при данной температуре. Таким образом, при скоростях кристаллизации, сравнимых со скоростями перераспределения примесей, возможны флукту-

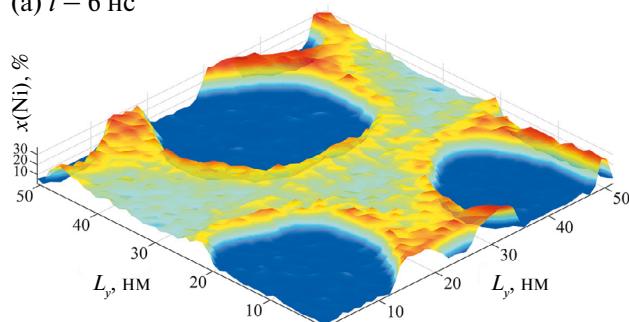
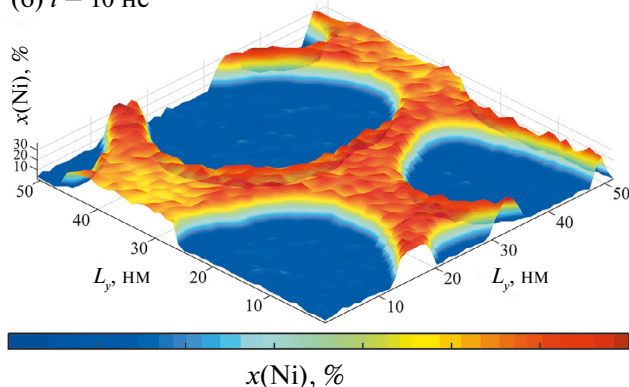
(а) $t = 6$ нс(б) $t = 10$ нс

Рис. 7. Профиль концентрации никеля в моделируемом образце сплава Мо с 14 ат. % Ni при росте кристаллитов на момент времени (а) $t = 6$ нс и (б) $t = 10$ нс.

ации концентрации примесей вдоль нормали к фронту кристаллизации.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в данной работе при помощи атомистического моделирования методом классической молекулярной динамики исследован процесс кристаллизации в бинарных системах. Были рассмотрены две бинарные металлические системы — безэвтектидная Cu–Ni и эвтектидная Mo–Ni со значительной областью сосуществования фаз. Показано, что метод СМІ (Compositional Moving Interface) позволяет проводить расчет фазовых диаграмм в обеих системах с требуемой точностью.

В системах со значительным отличием температур солидуса и ликвидуса на фронте кристаллизации наблюдается перераспределение компонент, что приводит к флуктуациям концентрации. Предложенный нами метод роста кристалла для расчета параметров равновесия кристалл/жидкость в двухкомпонентных сплавах более затратный по сравнению с СМІ-методом с точки зрения вычислений, но при этом он позволяет непосредственно моделировать

процессы, происходящие при кристаллизации бинарных систем в реальных экспериментах, в частности, ликвацию.

Работа выполнена при поддержке гранта № МТ-96 программы исследований ЕОТП Росатома. Авторы также выражают благодарность В.С. Дубу за ценные замечания и обсуждение данной работы.

Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Dremov V.V., Chirkov P.V., Karavaev A.V. Molecular dynamics study of the effect of extended ingrain defects on grain growth kinetics in nanocrystalline copper // Sci. Rep. 2021. V. 11. P. 934.
2. Ivanov I.A., Dub V.S., Karabutov A.A., Cherepetskaya E.B., Bychkov A.S., Kudinov I.A., Gapeev A.A., Krivilyov M.D., Simakov N.N., Gruzd S.A., Lomaev S.L., Dremov V.V., Chirkov P.V., Kichigin R.M., Karavaev A.V., Anufriev M. Yu., Kuper K.E. Effect of laser-induced ultrasound treatment on material structure in laser surface treatment for selective laser melting applications // Sci. Rep. 2021. V. 11. P. 23501.
3. Karavaev A.V., Chirkov P.V., Kichigin R.M., Dremov V.V. Atomistic simulation of hardening in bcc iron-based alloys caused by nanoprecipitates // Comp. Mat. Sci. 2023. V. 225. P. 112383.
4. Mahata A., Zaeem M.A., Baskes M.I. Understanding homogeneous nucleation in solidification of aluminum by molecular dynamics simulations // Model. Simul. Mater. Sci. Eng. 2018. V. 26. P. 025007.
5. Daw M.S., Baskes M.I. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals // Phys. Rev. B. 1984. V. 29. P. 6443.
6. Baskes M.I. Modified embedded-atom potentials for cubic materials and impurities // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. P. 2727.
7. Baskes M.I., Johnson R.A. Modified embedded atom potentials for HCP metals // Model. Simul. Mater. Sci. Eng. 1994. V. 2. P. 147.
8. Bartók A.P., Payne M.C., Kondor R., Csányi G. Gaussian Approximation Potentials: The Accuracy of Quantum Mechanics, without the Electrons // Phys. Rev. Lett. 2010. 104. P. 136403.
9. Bartók A.P., Kondor R., Csányi G. On representing chemical environments // Phys. Rev. B. 2013. V. 87. P. 184115.
10. Deringer V.L., Bartók A.P., Bernstein N., Wilkins D.M., Ceriotti M., Csányi G. Gaussian process regression for materials and molecules // Chem. Rev. 2021. V. 121. P. 10073–10141.
11. Thompson A.P., Swiler L.P., Trott C.R. Spectral neighbor analysis method for automated generation of quantum-accurate interatomic potentials // J. Comp. Physics. 2015. V. 285. P. 316–330.

12. *Shapeev A.V.* Moment Tensor Potentials: a class of systematically improvable interatomic potentials // *Multiscale Model. Simul.* 2016. V. 14. P. 1153–1173.
13. *Podryabinkin E.V., Shapeev A.V.* Active learning of linearly parametrized interatomic potentials // *Comput. Mater. Sci.* 2017. V. 140. P. 171–180.
14. *Wang H., Zhang L., Han J., Weinan E.* DeePMD-kit: A deep learning package for many-body potential energy representation and molecular dynamics // *Comput. Phys. Comm.* 2018. V. 228. P. 178–184.
15. *Zuo Y., Chen C., Li X., Deng Z., Chen Y., Behler J., Csányi G., Shapeev A.V., Thompson A.P., Wood M.A., Ong S.P.* Performance and cost assessment of machine learning interatomic potentials // *J. Phys. Chem. A.* 2020. V. 124. P. 731–745.
16. *Thompson A.P., Aktulga H.M., Berger R., Bolintineanu D.S., Brown W.M., Crozier P.S., in 't Veld P., Kohlmeyer A., Moore S.G., Nguyen T.D., Nguyen T.D., Trung D.* LAMMPS — a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales // *Comput. Phys. Commun.* 2022. V. 271. P. 108171.
17. *Stukowski A., Albe K.* Extracting dislocations and non-dislocation crystal defects from atomistic simulation data // *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* 2010. V. 18. P. 015012.
18. *Stukowski A.* Computational analysis methods in atomistic modeling of crystals // *J. Metals.* 2014. V. 66. P. 399–407.
19. *Larsen P.M., Schmidt S., Schiotz, J.* Robust structural identification via polyhedral template matching // *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* 2016. V. 24. P. 055007.
20. *Freitas R., Asta M., de Koning M.* Nonequilibrium free-energy calculation of solids using LAMMPS // *Comp. Mat. Sci.* 2016. V. 112. P. 333–341.
21. *de Koning M., Antonelli A.* Einstein crystal as a reference system in free energy estimation using adiabatic switching // *Phys. Rev. E* 1996. V. 53. P. 465–474.
22. *Okamoto H.* Phase diagrams for binary alloys // *ASM international, Materials Park, OH.* 2000. 356 p.
23. *Зиновьев В.Е.* Теплофизические свойства металлов при высоких температурах. Справочное издание. М.: Металлургия, 1989. 385 с.
24. *Sheng H.W., Kramer M.J., Cadieu A., Fujita T., Chen M.W.* Highly optimized Embedded-Atom-Method potentials for fourteen fcc metals // *Phys. Rev. B.* 2011. V. 83. P. 134118.
25. *Li X.-G., Hu C., Chen C., Deng Z., Luo J., Ong S.P.* Quantum-accurate spectral neighbor analysis potential models for Ni–Mo binary alloys and fcc metals // *Phys. Rev. B.* 2018. V. 98. P. 094104.
26. *Chen C., Deng Z., Tran R., Tang H., Chu I.-H., Ong S.P.* Accurate force field for molybdenum by machine learning large materials data // *Phys. Rev. Mat.* 2017. V. 1. P. 043603.
27. *Galvin C.O.T., Burr P.A., Cooper M.W.D., Fossati P.C.M., Grimes R.W.* Using molecular dynamics to predict the solidus and liquidus of mixed oxides (Th, U)O₂, (Th, Pu)O₂ and (Pu, U)O₂ // *J. Nuc. Mat.* 2020. V. 534. P. 152127.
28. *Galvin C.O.T., Grimes R.W., Burr P.A.* A molecular dynamics method to identify the liquidus and solidus in a binary phase diagram // *Comp. Mat. Science.* 2021. V. 186. P. 110016.
29. *Nose S.* A unified formulation of the constant temperature molecular dynamics methods // *J. Chem. Phys.* 1984. V. 81. P. 511.
30. *Hoover W.G.* Canonical dynamics: Equilibrium phase-space distributions // *Phys. Rev. A.* 1985. V. 31. P. 1695.
31. *Bastow B.D., Kirkwood D.H.* Solid/liquid equilibrium in the copper–nickel–tin system determined by microprobe analysis // *J. Institute of Metal.* 1971. V. 99. P. 277.
32. *Feest E.A., Doherty R.D.* The Cu–Ni equilibrium phase diagram // *J. Institute of Metal.* 1971. V. 3. P. 102.
33. *Predel B., Mohs R.* Thermodynamische Untersuchung flüssiger Nickel–Kupfer–Legierungen // *Archiv für das Eisenhüttenwesen.* 1971. V. 42. P. 575.
34. *Schurmann E., Schultz E.* Untersuchungen zum Verlauf der Liquidus und Solidus linien in den Systemen Kupfer–Mangan und Kupfer–Nickel // *International Journal of Materials Research.* 1971. V. 62. P. 758.
35. *Zhou S.H., Wang Y., Jiang C., Zhu J.Z., Chen L.-Q., Liu Z.-K.* First-principles calculations and thermodynamic modeling of the Ni–Mo system // *Mater. Sci. Eng. A.* 2005. V. 39. P. 288.
36. *Casselton R.E.W., Hume-Rothery W.* The equilibrium diagram of the system molybdenum–nickel // *J. Less-Common Met.* 1964. V. 7. P. 212–221.
37. *Wicker A., Allibert C., Driole J., Bonnier E.* Etude d'équilibres de phases dans les systèmes Ni–Nb–Mo, Ni–Nb et Ni–Mo // *Comptes rendus hebdomadaires des séances de l'Académie des sciences: Sér. C.* 1971. V. 271. P. 273.
38. *Kang S.-J., Song Y.-D., Kaysser W.A., Hofmann H.* Determination of Mo solidus in the Mo–Ni system by electrolytic phase separation method // *Intern. J. Mater. Research.* 1984. V. 75. P. 86.
39. *Yaqoob K., Joubert J.-M.* Experimental investigation of the Mo–Ni–Re system // *J. All. Comp.* 2013. V. 559. P. 101.

ATOMISTIC SIMULATION OF SPECIFICITIES OF MICROSTRUCTURE FORMATION IN BINARY SYSTEMS

R. M. Kichigin¹, P. V. Chirkov^{1, *}, A. V. Karavaev¹, and V. V. Dremov¹

*¹Russian Federal Nuclear Center—Zababakhin All-Russian Research Institute
of Technical Physics, Snezhinsk, Chelyabinsk region, 456770 Russia*

**e-mail: chirkovpv@vniitf.ru*

The selection and verification of interatomic interaction models for molecular dynamics simulation of crystallization from a melt is carried out in relation to binary systems with a significant difference in solidus and liquidus temperatures, using the example of Cu–Ni and Mo–Ni alloys. The potentials used were verified based on thermodynamic calculations of equilibrium melting parameters and on available experimental data. The conditions for the formation, characteristics, and features of the evolution of the crystal structure in the course of solidification of binary systems and alloys with a significant difference in the solidus and liquidus temperatures are determined. Large-scale atomistic calculations of the redistribution of components of a Mo–Ni binary alloy in the course of its crystallization from a melt were carried out.

Keywords: binary alloys, Cu–Ni, Mo–Ni, solidus, liquidus, classical molecular dynamics, interatomic interaction potentials