DOI: 10.26565/2222-5617-2022-37

ISSN 2222-5617 (Print)

Original article In print article https://doi.org/10.26565/2222-5617-2022-37-01 UDC 539.2:537.31 PACS 73.51.Ph, 73.63.Fg

# ПРОЦЕСИ ПЕРЕНОСУ ЗАРЯДУ, МАСИ ТА ТЕПЛА В КОМПОЗИТІ FeNi

### Л.О. Пащенко

https://orcid.org/0000-0002-9008-6252 Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, площа Свободи, 4, Харків, Україна, 61022

## В.В. Богданов

https://orcid.org/0000-0003-2634-3549 Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, площа Свободи, 4, Харків, Україна, 61022

## Р.В. Вовк

rvvovk2017@gmail.com https://orcid.org/0000-0002-9008-6252

Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, площа Свободи, 4, Харків, Україна, 61022

## С.В. Дукаров

https://orcid.org/0000-0002-3527-3661 Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, площа Свободи, 4, Харків, Україна, 61022

## М.В. Кислиця

https://orcid.org/0000-0002-4143-7650 Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, площа Свободи, 4, Харків, Україна, 61022

## С.І. Петрушенко

https://orcid.org/0000-0002-7727-9527 Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, площа Свободи, 4, Харків, Україна, 61022

## В.М. Сухов

https://orcid.org/0000-0001-5784-5248

Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, площа Свободи, 4, Харків, Україна, 61022

## Г.Я. Хаджай

https://orcid.org/0000-0002-1257-8702 Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, площа Свободи, 4, Харків, Україна, 61022

## І.Л. Гулатіс

https://orcid.org/0000-0002-9008-6252

Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, площа Свободи, 4, Харків, Україна, 61022

## Е.С. Геворкян

https://orcid.org/0000-0003-0521-3577

Ukrainian State University of Railway Transport, 7 Feierbakh Sq., Kharkiv 61050, Ukraine

## С.Р. Вовк

https://orcid.org/0000-0003-1580-5306

Ukrainian State University of Railway Transport, 7 Feierbakh Sq., Kharkiv 61050, Ukraine Centre of Low Temperature Physics, Faculty of Science, P.J. Safarik University, Park Angelinum 9, 041 54 Kosice, Slovakia

©Пащенко Л.О., Богданов В.В., Вовк Р.В., Дукаров С.В., Кислиця М.В., Петрушенко С.I., В.М. Сухов, Хаджай Г.Я., Гулатіс І.Л., Геворкян Е.С., Вовк С.Р., Фехер А., Ду Джуньи, Латошиньска І.Н., 2022 Open Access. This article is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/

### A.Feher

https://orcid.org/0000-0001-8845-4709

Centre of Low Temperature Physics, Faculty of Science, P.J. Safarik University, Park Angelinum 9, 041 54 Kosice, Slovakia

### Junyi Du

https://orcid.org/0000-0002-9147-4484

V.N. Karazin Kharkiv National University, 4 Svobody Sq., Kharkiv 61022, Ukraine School of Mathematical Sciences, Luoyang Normal University, Luoyang 471934, China

#### J.N.Latosińska

https://orcid.org/0000-0002-9008-6252 Adam Mickiewicz University, Umultowska 85,61-614 Poznan, Poland

Надійшло до редакції 28 серпня 2022 р. Переглянуто 29 вересня 2022 р. Прийнято до друку 25 жовтня 2022 р.

У роботі представлено дослідження процесів взаємної дифузії в бінарній системі Fe - Ni (отриманій електроконденсацією порошків нікелю і заліза) методом рентгенівської енергодисперсійної спектроскопії, а також процесів тепло- і електропровідності в температурному інтервалі 5-300 К. Виявлено добре розділені області майже чистого заліза і нікелю . Вміст нікелю, оцінений за концентраційною залежністю коефіцієнта взаємної дифузії, що визначає кінетику процесу гомогенізації електроконсолідованого зразка композиту Fe - Ni, склав ~ 70 ат. %. Значення коефіцієнта взаємної дифузії електроконсолідованого композиту Fe - Ni значно вище, ніж у сплаву аналогічного складу, що, ймовірно, є результатом впливу технології SPS (тиск і струм в одному напрямку під час консолідації), а також значного вкладу зернограничного дифузійного масопереносу в композиті. Встановлено, що електро- і теплопровідність електроконсолідованого зразка істотно вищі, ніж у зразків того ж складу, отриманих плавлінням. Виявлено, що температурні залежності електроконсолідованого зразка істотно вищі, ніж у зразків того ж складу, отриманих плавлінням. Виявлено, що температурні залежності електроконсолідованого зразка в дослідженому інтервалі 5-300 К обумовлені розсіюванням електронів на дефектах і на фононах, причому розсіювання електронів на фононах, можна з високою точністю апроксимувати співвідношення Блоха-Грюнайзена-Вільсона. В роботі показано, що експериментальні дані про температурні залежності ефективних електричного опору та теплопровідності в інтервалі 4.2-300 К електроконсолідованого композиту Fe та Ni, а в якості третьої фази розглянуте межзеренне середовище у вигляді системи є чисті Fe та Ni, а в якості третьої фази розглянуте межзеренне середовище у вигляді сплаву з середнім складом, близьким до Fe<sub>0.50</sub>Ni<sub>0.50</sub>.

Ключові слова: електроконсолідований композит, низькі температури, електричний опір, теплопровідність, межі Hashin-Shtrikman, трифазна система, межзеренне середовище.

**Як цитувати**: Пащенко Л.О., Богданов В.В., Вовк Р.В., Дукаров С.В., Кислиця М.В., Петрушенко С.І., В.М. Сухов, Хаджай Г.Я., Гулатіс І.Л., Геворкян Е.С., Вовк С.Р., Фехер А., Ду Джуньі, Латошиньска І.Н. Процеси переносу заряду, маси та тепла в композиті FeNi. Вісник XHУ імені В.Н. Каразіна, серія «Фізика». Вип. 37, 2022; 7-20. https://doi.org/10.26565/2222-5617-2022-37-01

In cites: Pashchenko L.O., Bogdanov V.V., Vovk R.V., Dukarov S.V., Kyslytsia M.V., Petrushenko S.I., Sukhov V.M., Hadzhai G.Ya., Gulatis I.L., Gevorkyan E.S., Vovk S.R., Feher A., Du Junyi, Latosińska J.N. Processes of charge, mass and heat transfer in FeNi composite. The Journal of V.N. Karazìn Kharkiv National University. Series "Physics" Iss. 37, 2022; 7-20. https://doi.org/10.26565/2222-5617-2022-37-01 (in Ukrainian)

#### ВСТУП

Отримання нових матеріалів поліфункціонального призначення iз заданими магніторезистивними характеристиками продовжує залишатися одним із основних напрямків сучасної фізики твердого тіла [1-5]. Слід зазначити, що найважливішу роль при розробці технологій одержання таких матеріалів може відігравати застосування інтенсивних методів компактування (електроконсолідація) [6], спеціальних методик наноструктурування [7], у тому числі із застосуванням екстремальних зовнішніх впливів високі тиски, опромінення електронами з високою енергією 1,8], а також використання сучасних методів моделювання їх структури та технологічних характеристик [9,10].

Бінарні металеві системи є важливим об'єктом сучасних технологій і широко використовуються

як у металургії, так і спеціалізованих наукомістких додатках. У зв'язку з цим представляється інтерес система Fe-Ni, яка поєднує в собі доступність компонентів та специфічні властивості. Так, ця бінарна система знаходить застосування у сучасних технологіях, наприклад, як матриця для OLED дисплеїв. Це стимулює активні дослідження у напрямі покращення методик електроосадження цього сплаву [11, 12]. Широке використання композитні структури на основі Fe-Ni знайшли як захисні покриття [13] та основи каталізаторів, що використовуються при переробці пластику [14, 15], розщепленні води [16-19] та зберіганні водню [20, 21]. Окремо варто відзначити, що Fe-Ni, поряд з іншими біметалевими системами [22], розглядається як біфункціональний елемент для виділення та відновлення кисню в паливних елементах та повітряно-цинкових акумуляторах [23].

Високоупорядковані сплави Fe-Ni (т.зв. Tetrataenite) розглядаються як доступна альтернатива сучасним потужним магнітам, що виготовляються на основі рідкісноземельних матеріалів [24, 25].

Слід також зазначити, що еквіатомні магнітні сплави нікель-залізо має підвищену магнітну проникність, підвищену індукцію технічного насичення та прямокутну петлю гістерезису, що широко використовують у обчислювальній техніці та пристроях автоматичного управління [1]. Тому дуже перспективними видаються дослідження, створені задля управління властивостями таких сплавів, і навіть на вдосконалення способів їх отримання [1, 6, 9, 10].

Необхідно відзначити, що, незважаючи на широкий розвиток різних, насамперед електрохімічних способів одержання структур на основі Fe-Ni, металургійні методи, зокрема спікання, продовжують бути основою багатьох сучасних технологій.

Технології електроконсолідації FAST (Field Activated Sintering Technic) та SPS (Spark Plasma Sintering) [26] дуже ефективні для виготовлення композитів матеріалів, що важко спікаються, і сполук. У таких технологіях уздовж прикладеного зовнішнього тиску пропускається електричний струм, що викликає нагрівання за рахунок польової та прямої дії. Це дозволяє значно прискорити нагрівання та скоротити час спікання до декількох хвилин, завдяки чому не встигають утворитися кристалічні зерна великих розмірів, тобто ущільнення випереджає зростання зерна [27] і тим самим забезпечується високощільна та тонкодисперсна структура композиту [28].

При консолідації активується масоперенесення шляхом поверхневої та об'ємної дифузії, а також пластичної деформації [29]. Дані процеси активуються температурою, яка при електроконсолідації лежить у межах  $0.5T_{melt} < T_{sint} < T_{melt}$ . У місцях точкових контактів зерен відбувається їхня деформація, при цьому багаторазово зростає площа кордонів, що збільшує масоперенесення.

По межах часток протікають електророзрядні процеси, що прискорює консолідацію за рахунок локального зварювання частинок порошку та додаткового масопереносу внаслідок внутрішніх температурних градієнтів у композиті під впливом неоднорідної густини електричного струму між порами [30].

Локальне утворення плазми в результаті дії електричних розрядів призводить до очищення та активації поверхні спекаемых порошків, що істотно сприяє і хімічній чистоті кінцевого продукту, і ущільнення порошків, що спекаються [31].

У той же час дифузійні процеси, що протікають у бінарній системі Fe-Ni як у процесі отримання виробу, так і при його експлуатації, вивчені ще недостатньо, тим більше що саме дифузійні процеси зрештою визначають не тільки можливість створення структур із заданими функціональними властивостями, а й їх збереження з часом.

Фундаментальний інтерес представляють транспортні властивості таких систем – електро- та теплопровідність, особливо за низьких температур, де температурна залежність електроопору формується за рахунок розсіювання електронів на фононах, дефектах, електронах та магнонах, а температурна залежність теплопровідності визначається, в першу чергу, розсіюванням носіїв тепла – електронів та фононів – на дефектах та один на одному.

Ця робота присвячена вивченню концентраційної залежності коефіцієнта дифузії, а також дослідженню електро- та теплопровідності в інтервалі 4.2–300 К у зразках металевого композиту Fe-Ni, отриманих методом електроконсолідації (SPS).

#### ЕКСПЕРИМЕНТ

Зразки отримували методом електроконсолідації порошків нікелю (ПНЕ-45-200 мкм, вміст нікелю 99.9%) і заліза (розпилений ПЗР 2.200.28, вміст заліза 99.9%) з розміром зерна близько 200 мкм. Електроконсолідацію проводили протягом 10 хв. при 1100 С, тиску 35 МПа та струмі ~5 кА. Швидкість нагріву становила ~200 °С/ хв. Досліджений зразок композиту мав форму бруска прямокутного перерізу з розмірами 15х4х6 мм<sup>3</sup>.

Поверхню зразка ретельно полірували та досліджували у растровому електронному мікроскопі Tescan Vega 3LMH, оснащеному EDS детектором характеристичного рентгенівського випромінювання Bruker XFlash 5010.

Визначення елементного складу виконувалося самокалібрування детектора. Для визначення як просторового розподілу елементів проводилося поточкове сканування зразка в напрямку паралельному або перпендикулярному напрямку електричного струму, що проходив через зразок, і прикладеного при спіканні тиску. Просторовий крок зонда при переході від однієї точки сканування в іншу становив 1 або 2 мкм, а час накопичення сигналу з однієї точки зазвичай вибирався рівним 32 с. Для всіх елементів, крім заліза та нікелю, було обрано режим «Тільки деконволюція». Для врахування можливого впливу форми вихідної частинки та поверхневих ефектів на масоперенесення речовини, в окремій серії експериментів проводилося послідовне проходження електронного зонда вздовж однієї і тієї ж лінії зразка з використанням різних значень напруги, що прискорює. Оскільки глибина проникнення електронів, отже, і область генерації сигналу характеристичного рентгенівського випромінювання, сильно залежить від початкової енергії електронів, це дозволяло одержати деякі уявлення про вплив формфактора на дифузійні

The Journal of V.N. Karazìn Kharkiv National University. Series "Physics" Iss. 37, 2022 Вісник ХНУ імені В.Н. Каразіна, серія «Фізика», вип. 37, 2022



*Рис. 1.* Результати елементного картування та SEM зображення зразка композиту Fe-Ni, отриманого методом електроконсолідації.

*Fig. 1.* Results of elemental mapping and SEM image of a Fe-Ni composite sample obtained by the electroconsolidation method.

процеси у зразку.

Опір зразка, г(Т), вимірювали стандартним 4-х контактним методом; теплопровідність, l(T), вимірювали методом стаціонарного одновісного теплового потоку. Температурний інтервал вимірювань 4.2-300 К.

#### РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Рис. 1. Результати елементного картування та SEM зображення зразка композиту Fe-Ni, отриманого методом електроконсолідації

На рис. 1 представлені карта розподілу елементів



*Рис.* 2. Залежність концентрації нікелю від координати вздовж лінії сканування.

та SEM зображення для зразка Fe-Ni пiсля спiкання. Видно, що зразок є двофазним, із чітко розділеними областями практично чистого заліза та нікелю. Контраст між фазами добре спостерігається у BSE, а й у SE режимах. Це, можливо, пов'язано з різною твердістю нікелю та заліза, що спричиняє морфологічний контраст при поліруванні.

Типова залежність концентрації нікелю (або заліза) від координати зонда представлена на рис. 2. В якості точки відліку брався лівий край SEM зображення. Розмір кадру та його розташування вибиралися таким чином, щоб захопити області фазових зон, вільні від другого компонента (див. рис. 3).

На рис. 4 представлені результати побудови розподілу елементів уздовж лінії сканування, отримані при різному значенні напруги, що прискорює. Сканування здійснювалося вздовж однієї й тієї лінії, без переміщення зразка (див. рис. 3). Мал. 4 дає деяке уявлення про розподіл елементів за глибиною зразка. Видно, що в центральній області розподілу відмінність між концентраціями, отриманими в одній точці зразка, при енергії зонда в 15 і 30 кеВ досягають 20-25 ат. %. Для порівняння вкажемо, що для залежностей, отриманих при однаковій прискорювальній напрузі при послідовних циклах сканування, така відмінність становить лише 1-2% і має випадковий характер. Спостережуваний ефект може бути обумовлений особливостями поширення речовини у вузькому шарі на поверхні зерна, які можуть впливати на поведінку нанокомпозитних структур. Так, автори [25] показали, що завдяки розмірній залежності коефіцієнта дифузії, синтез функціональних структур типу L1, фази FeNi

*Fig. 2.* Dependence of nickel concentration on the coordinate along the scan line.

Л.О. Пащенко, В.В. Богданов, Р.В. Вовк, С.В. Дукаров, М.В. Кислиця, С.І. Петрушенко, В.М. Сухов, Г.Я. Хаджай, І.Л. Гулатіс, Е.С. Геворкян, С.Р. Вовк, А.Фехер, Джуньі Ду, І.Н.Латошинська



*Рис. 3.* Приклад кадрування для отримання серії спектрів EDS. На зображенні SE видно наслідки вуглецевого забруднення, стимульованого багаторазовим проходженням електронного пучка.

*Fig. 3.* An example of framing to obtain a series of EDS spectra. The SE image shows the effects of carbon contamination stimulated by multiple electron beam passes.

виявився можливим при температурі лише 320 °C. Проте детальне розуміння цього явища потребує окремого дослідження.

Для отримання концентраційних залежностей коефіцієнта дифузії ми використовували дані, отримані за енергії зонда 30 кеВ. Як видно із рис.

4, зі збільшенням енергії зонда експериментальні залежності асимптотично наближаються до тих, які отримані при напрузі, що прискорює 30 кВ. Очевидно, саме вони характеризують дифузійні процеси, які у масиві спекаемого матеріалу.

Методом Больцмана-Матано по кривій С<sub>Ni</sub>(x) (рис.



*Рис. 4.* Залежність концентрації заліза від координати, отримані при різній енергії електронного зонда.

*Fig. 4.* Dependence of iron concentration on the coordinate obtained at different energy of the electron probe..



*Рис. 5.* Концентраційна залежність коефіцієнта дифузії нікелю,  $\widetilde{D}(C_{Ni})$ , в композиті Fe-Ni.

Fig. 5. Concentration dependence of the diffusion coefficient of nickel  $\widetilde{D}(C_{_{Ni}})$  in the Fe-Ni composite.

The Journal of V.N. Karazìn Kharkiv National University. Series "Physics" lss. 37, 2022 Вісник ХНУ імені В.Н. Каразіна, серія «Фізика», вип. 37, 2022



Рис. 6. Температурні залежності електричного опору та теплопровідності електроконсолідованого сплаву  $Fe_{0.5}Ni_{0.5}$ . —, О – експеримент, лінія для електроопору проведена відповідно до (1)-(2), лінія для теплопровідності проведена «на око». На вставці: функція Лоренца, L(T) =  $l_e(T)r(T)/T$ : 1 – за нашими даними; 2 – за даними [38, 39].

*Fig. 6.* Temperature dependence of electrical resistance and thermal conductivity of electroconsolidated alloy  $Fe_{0.5}Ni_{0.5}$ . —, O is an experiment, the line for electrical resistance is drawn according to (1)-(2), the line for thermal conductivity is drawn "by eye". Inset: Lorentz function,  $L(T) = l_e(T)r(T)/T$ : 1 – according to our data; 2 - according to [38, 39].

2) ми розрахували концентраційну залежність коефіцієнта взаємної дифузії  $\widetilde{D}$  (C) [32]. Результати розрахунків концентраційної залежності коефіцієнта дифузії подано на рис. 5. Зазначимо, що ми не виявили значного впливу напрямку проходження зонда (щодо напряму пропускання струму, прикладеного при спіканні) на величину коефіцієнта дифузії.

Залежність **D**(C) має вигляд плавної кривої з максимумом в області ~70 ат.% Ni відповідно до літературних даних (див., напр., [33–36]) для коефіцієнта взаємної дифузії в системі Fe-Ni і трактується як концентраційна залежність коефіцієнта дифузії компонентів бінарному сплаві Fe-Ni з необмеженою розчинністю компонентів.

Максимум на залежності **D**(C) пов'язаний з видом діаграми рівноваги бінарної системи Fe-Ni, на якій криві ліквідус і солідус для сплавів з вмістом 5,9– 100 ат.% Ni мають вигляд ланцюга, що провисає, з мінімумом при 1436 °C і вмісті 68 ат.

Як відомо, дифузійна рухливість атомів у сплаві змінної концентрації тим вища, що нижча температура плавлення сплаву. Саме тому коефіцієнт взаємної дифузії сплаву концентрації ~70ат.% Ni має максимальне значення.

Однак, отримані нами значення коефіцієнта дифузії значно більші, ніж у літературі [33–36]. Великі величини коефіцієнтів дифузії можна пов'язати з впливом електричного струму, що протікає через частки Fe та Ni. Струм викликає локальний розігрів та очищення поверхні частинок. Це активує процес дифузії. Крім того, через велику площу міжчасткових (міжфазових) кордонів у композитах дифузійний масоперенесення по кордонах може стати визначальним.

результати Експериментальні вимірювань електричного опору та теплопровідності наведено на рис. 6. Видно, що в області залишкового опору (r(T)≈r<sub>2</sub>≈3.26 mWcm, T£25 К) теплопровідність пропорційна температурі, l<sub>a</sub>(T)~T. Така поведінка обох досліджених величин свідчить про електронне теплоперенесення, для якого, в цьому інтервалі температур, характерно пружне розсіювання електронів на домішках та інших дефектах. У цьому випадку виконується закон Відемана-Франця-Лоренца  $r(T)l_{a}(T)/T \approx r_{0}l_{a}(T)/T \approx const.$  [37].

При високих температурах (Т<sup>3</sup>температури Дебая,  $\theta$ , див. Таблицю) переважає пружне розсіювання електронів на фононах [37]. Тут r(T)~T, l<sub>e</sub>(T)»const. та закон Відемана-Франца-Лоренца також виконується. Однак, як видно із рис. 6, у нашому випадку при найвищих із досліджених температур теплопровідність ще не досягає постійного значення, тобто розсіювання електронів на фононах все ще залишається непружним і l<sub>e</sub>(T)r(T)/T = L(T) < L<sub>0</sub> [37].

Поведінка функції Лоренца, L(T), у дослідженому температурному інтервалі наведено на вставці до рис. 6 (крива 1). Низькотемпературний максимум, присутній залежно від L(T), спостерігали раніше [40, 41]. На вставці до мал. 6 (крива 2) наведена функція Лоренца, побудована за рекомендованими даними системи FeNi з істотно великим залишковим опором (14.8 mWcm) [38, 39]. В цьому випадку на кривій L(T) (вставка, крива 2) також видно низькотемпературний максимум, проте дуже слабко виражений. Тобто низькотемпературний максимум L(T) зменшується зі збільшенням дефектності зразка, тоді як вклад фононів у теплопровідність сплавів зі збільшенням дефектності збільшується [37, 42]. Таким чином, максимум L(T) пов'язаний, ймовірно, з особливостями розсіювання електронів домішками та деформацією фононного спектра під впливом останніх [43, 44].

На рис. 7 наведено електричний опір та теплопровідність електроконсолідованого композиту Fe-Ni разом з даними [38-39, 45] для сплаву FeNi та рекомендованими даними [38-39] для Fe i Ni. Параметри електроконсолідації такі, що досліджений



*Рис.* 7. Температурні залежності електричного опору (а) та теплопровідності (b). 1 – композит Fe-Ni; 2 – Ni [38-39]\*; 3 – Fe [38-39]\*; 4 – сплав FeNi [38-39]\*; 5 – сплав FeNi [45]. \* – рекомендовані значення.

*Fig.* 7. Temperature dependences of electrical resistance (a) and thermal conductivity (b). 1 – Fe-Ni composite; 2 – Ni [38-39]\*; 3 – Fe [38-39]\*; 4 – FeNi alloy [38-39]\*; 5 – FeNi alloy [45]. \* – recommended values.

зразок складається з частинок Fe та Ni, тому можна було очікувати, що як опір, так і теплопровідність зразка лежатимуть між кривими 2 та 3 на рис. 7, а та b (див., напр., [46, 47]).

Однак видно, що опір і теплопровідність композиту Fe-Ni (криві 1) лежать між відповідними кривими (2 і 3), отриманими для металів Fe i Ni, і для FeNi сплаву з великим значенням залишкового опору (криві 4 і 5). Це означає, що міжчасткові межі в композиті меншою мірою обмежують потоки тепла і заряду, ніж невпорядкованість у разі однорідних сплавів з таким самим співвідношенням компонент.

У всьому дослідженому інтервалі температур 4.2,300 К експериментальні результати щодо електричного опору електроконсолідованого FeNi можна з високою точністю (Dr/r£1%) апроксимувати формулою:

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_{\rm ph} + b_0 \times T^2 \tag{1}$$

Тут  $\rho_0$  – залишковий опір, пов'язаний із розсіюванням електронів на дефектах.  $\rho_{ph}$  – опір, зумовлений розсіюванням електронів на фононах. Цей член можна уявити у загальному вигляді, як [48, 49]

$$\rho_{ph}(T) = C_{5} \left(\frac{T}{\theta}\right)^{5} \cdot \int_{0}^{\theta/T} \frac{e^{x} x^{5} dx}{\left(e^{x} - 1\right)^{2}} + C_{3} \left(\frac{T}{\theta}\right)^{3} \cdot \int_{0}^{\theta/T} \frac{e^{x} x^{3} dx}{\left(e^{x} - 1\right)^{2}}$$
(2)

причому 1-е доданок (співвідношення Блоха-Грюнайзена) описує внутрішньозонне, s-s розсіювання електронів, у той час як 2-е доданок пов'язане з міжзонним s-d розсіюванням, характерним для перехідних металів, їх сплавів і сполук [48-53]; х – стала інтегрування.

Член  $b_0 \times T^2$  часто пов'язують із електронелектронним розсіюванням (див., напр., [54, 55]) або з розсіюванням електронів на спинових хвилях [45, 55]. [55] зазначено, що експериментальні значення коефіцієнтів  $b_0$  для феро- та неферомагнітних металів близькі за величиною.

У [56-58] член  $b_0 \times T^2$  пов'язали з інтерференцією між електрон-фононним та електрон-домісним взаємодіями. У цьому випадку параметр  $b_0$  зростає зі збільшенням концентрації дефектів.

У таблиці наведено параметри припасування урний (1)-(2) до температурної залежності опору системи FeNi для нашого зразка, для даних [38] i [45], а також для Fe та Ni [38].

З таблиці видно, що у досліджених композитах розсіювання електронів на фононах обумовлено міжзонними s-d переходами, тоді як s-s розсіювання відсутнє –  $C_5=0$ . Не виявлено також електронно-електронне розсіювання та розсіювання електронів на спинових хвилях. Відсутність члена  $b_0 \times T^2$  швидше за все вказує на відносно малу кількість дефектів у зразку.

Видно також відмінності у параметрах апроксимації  $\rho(T)$  для системи Fe-Ni та для металів Fe та Ni. Для системи Fe-Ni параметри C<sub>5</sub> і b<sub>0</sub> збільшуються зі зростанням  $\rho_0$ , тобто зі зростанням дефектності зразка. Така поведінка доданку b<sub>0</sub>T<sup>2</sup> свідчить про те, що це доданок обумовлено інтерференцією між непружним розсіюванням електронів на фононах та пружним розсіюванням електронів на межах та дефектах [56-58]. Збільшення параметра C<sub>5</sub> зі зростанням  $\rho_0$  пов'язано, ймовірно, з наявністю у системі Fe-Ni, розглянутої в [38,45], важких домішок [43]. Величини параметрів C<sub>3</sub>

The Journal of V.N. Karazìn Kharkiv National University. Series "Physics" Iss. 37, 2022 Вісник ХНУ імені В.Н. Каразіна, серія «Фізика», вип. 37, 2022



*Рис. 8.* Межі HS електроопору (а) та теплопровідності (b) електроконсолідованого еквіатомного композиту Fe-Ni. 1 – експеримент, 2 – верхня межа, 3 – нижня межа. На вставках – вихідні дані [56,57] для розрахунків за формулою (3). Вставка 1**a**: r(Ni) - 1, r(Fe) - 2.  $r(Fe_{51}Ni_{49}) - 3$ . Вставка в 1**b**: l(Ni) - 1, l(Fe) - 2.  $l(Fe_{46}Ni_{51}) - 3$ .

*Fig.* 8. HS limits of electrical resistance (a) and thermal conductivity (b) of electroconsolidated equiatomic Fe-Ni composite. 1 – experiment, 2 – upper limit, 3 – lower limit. The insets show the original data [56, 57] for calculations according to formula (3). Insert 1a: r(Ni) - 1, r(Fe) - 2.  $r(Fe_{51}Ni_{49}) - 3$ . Insert in 1b: l(Ni) - 1, l(Fe) - 2.  $l(Fe_{46}Ni_{51}) - 3$ .

близькі один до одного і від ро не залежать.

Що стосується рекомендованих значень для металів Fe та Ni, то вони відносяться до матеріалів досить високої чистоти (ггг<sub>ге</sub>≈440 и ггг<sub>Ni</sub>≈1860). Для цих даних параметри C<sub>3</sub> дуже близькі один до одного, але приблизно втричі менші, ніж для системи Fe-Ni. доданок  $b_0T^2$  виявилося необхідним лише при апроксимації  $\rho(T)$  для Ni.

Температури Дебая, визначені як параметр апроксимації залежностей  $\rho(T)$ , вище, ніж певні іншими способами (див. напр. [59]). Це може бути пов'язано з тією обставиною, що формула (2) є досить грубим наближенням, в якому враховано лише розсіювання електронів поздовжніми фононами [54].

В [53] були оцінені межі ефективних магнітної проникності макроскопічно однорідного та ізотропного багатофазного матеріалу, виходячи з відомих магнітних проникностей та об'ємних часток кожної із фаз. За аналогією отримані [53] результати справедливі також для діелектричної проникності, електропровідності, теплопровідності і коефіцієнта дифузії зазначених матеріалів.

Зазначимо, що найширші межі провідності багатофазної системи – найгірший випадок – дає паралельне та послідовне з'єднання фаз.

Отримані в [53] найбільш вузькі кордони у загальному випадку мають вигляд:

$$\sigma_l^* \geq \sigma_l + \frac{A_l}{1 - A_l (3\sigma_l)};$$

$$A_{l} = \sum_{t=2}^{n} \frac{v_{t}}{(\sigma_{t} - \sigma_{l})^{-1} + (3\sigma_{l})^{-1}}$$
(3)

$$\sigma_{m}^{*} \leq \sigma_{m}^{*} + \frac{A_{m}}{1 - A_{m} (3\sigma_{m})};$$

$$A_{m}^{*} = \sum_{t=2}^{n} \frac{v_{t}}{(\sigma_{t}^{*} - \sigma_{m}^{*})^{-1} + (3\sigma_{m}^{*})^{-1}} \qquad (4)$$

Тут індекси *t* (*t*=1, 2, 3, ... *n*) нумерує фази у порядку (наприклад) зростання провідності, тобто від

$$s_t \partial o s_m; v_t - o o o e M ha частка фази t, \sum_{t=1}^n v_t = 1.$$

Для двофазних матеріалів без значного розсіювання на міжфазних межах отримані межі виражаються безпосередньо через провідності та об'ємні частки складових фаз [53, 54]:

$$\sigma_l^* = \sigma_l + \frac{v_2}{\frac{1}{\sigma_2 - \sigma_1} + \frac{v_1}{3\sigma_1}} u$$

The Journal of V.N. Karazìn Kharkiv National University. Series "Physics" Iss. 37, 2022 Вісник ХНУ імені В.Н. Каразіна, серія «Фізика», вип. 37, 2022

#### Таблиця

Параметри апроксимації r(T) у інтервалі 4.2–300 К для еквіатомної системи FeNi, а також Ni та Fe, рівняннями (1)-(2)

Table

Approximation parameters r(T) in the range 4.2–300 K for the equiatomic FeNi system, as well as Ni and Fe, by equations (1)-(2)

N⁰	Склад	$\rho_0^{} \! \times \! 10^8  \text{Om} \! \times \! \text{m}$	$C_3 \times 10^8 \text{ Om} \times \text{m}$	$C_5 \times 10^8 \text{ Om} \times \text{m}$	θ, Κ	b <sub>0</sub> ×10 <sup>4</sup> , Ом×м/К <sup>2</sup>
1	Fe-Ni	3.26	75	0	624	0
2	FeNi [38]*	9	63	5.5	528	0.605
3	FeNi [45]	10.49	69	18.5	726	1.4
4	Fe [38]*	0.0225	22.4	47.9	587	0
5	Ni [38]*	0.0032	25.35	6.05	575	0.071

\* – рекомендовані значення

[53]:

$$\sigma_{m}^{*} = \sigma_{m} + \frac{v_{1}}{\frac{1}{\sigma_{1} - \sigma_{2}} + \frac{v_{2}}{3\sigma_{2}}}, s_{1} < s_{2}. (5)$$

У [55] ми досліджували електро- та теплопровідність електроконсолідованого композиту  $Fe_{0.5}Ni_{0.5}$  в інтервалі 4.2–300 К. Виявилося, що як електро-, так і теплопровідність зразка лежать нижче за криві для чистих Fe i Ni [56,57], але вище, ніж для сплаву  $Fe_{0.5}Ni_{0.5}$  [56-58]. Це означає, що міжчасткові кордону в композиті дають істотний внесок у розсіювання носіїв тепла та заряду, тобто електро- та теплопровідність зразка не можна описати формулою (5).

У [59] поверхня цього зразка була вивчена в растровому електронному мікроскопі, оснащеному детектором EDS характеристичного рентгенівського випромінювання. Це дозволило визначити просторове розподілення елементів Fe і Ni на поверхні зразка, і, за цими даними, оцінити коефіцієнт взаємної дифузії заліза та нікелю в цій системі при температурі електроконсолідації (≈1100°С).

Виявилося, що ширина дифузійної зони становить близько 60 мкм, що можна порівняти з початковими розмірами зерен Fe і Ni – ≈200 мкм. Тоді в грубому наближенні об'ємна частка чистих Fe і Ni становить ≈30%, тобто міжчасткове середовище не тільки робить істотний внесок в електро- і теплоопір, але і займає 2/3 обсягу зразка.

Таким чином, композит  $Fe_{0.5}Ni_{0.5}$  після електроконсолідації стає трифазною системою та його провідності слід описувати за формулами (3) для n=3.

Позначаючи через  $s_b$  провідність міжчасткового середовища, маючи провідність у порядку зростання —  $s_1 < s_2 < s_3$ , тобто  $s_b < s_{Fe} < s_{Ni}$ й використав (3), маємо

$$\sigma_l^* = \sigma_b + \frac{A_b}{1 - A_b (3\sigma_b)},$$

$$A_{b} = \frac{\mathbf{v}_{Fe}}{\frac{1}{\sigma_{Fe} - \sigma_{b}} + \frac{1}{s\sigma_{b}}} + \frac{\mathbf{v}_{Ni}}{\frac{1}{\sigma_{Ni} - \sigma_{b}} + \frac{1}{s\sigma_{b}}}; (6)$$

$$\sigma_{m}^{*} = \sigma_{N}^{*} + \frac{A_{N}}{1 - A_{N}^{*} (3\sigma_{N}^{*})},$$

$$A_{Ni} = \frac{v_{b}}{\frac{1}{\sigma_{b}^{-} - \sigma_{Ni}^{*}} + \frac{1}{s\sigma_{Ni}^{*}} + \frac{v_{Fe}}{\frac{1}{\sigma_{Fe}^{-} - \sigma_{Ni}^{*}} + \frac{1}{s\sigma_{Ni}^{*}}}$$
(7)

Передбачається, що  $v_{N_i} = v_{Fe} \approx 0.17$ ;  $v_b \approx 0.66$  відповідно до розміру дифузійної зони.

Провідність міжчасткового середовища, s<sub>b</sub>, нам не відома, і її слід вибрати так, щоб експериментальні дані – ефективні провідності системи – перебували всередині кордонів (6)-(7). Оскільки міжчасткове середовище формується за рахунок взаємної дифузії між частинками чистих Fe та Ni, природно припустити, що склад цього середовища відповідає складу сплаву Fe<sub>0.5</sub>Ni<sub>0.5</sub>.

На рис. 1 наведено межі (6)-(7) в інтервалі 4.2–300 К при  $s_{Ni}(T)$ ,  $s_{Fe}(T)$  и  $s_b(T)$ , взятим з [56,57], причому залежність  $r_b(T)=1/s_b(T)$  відповідає складу  $Fe_{0.51}Ni_{0.49}$ [56], а залежність l(T) відповідає складу  $Fe_{40}Ni_{51}$  [57]. Відповідні експериментальні дані зображені точками. Видно, що у всьому дослідженому інтервалі температур експериментальні дані знаходяться в межах (6)-(7). На вставках наведено температурні залежності  $r_{Ni}(T) = 1/s_{Ni}(T)$ ,  $r_{Fe}(T) = 1/s_{Fe}(T)$ ,  $r_b(T) = 1/s_b(T)$  [7] і  $I_{Ni}(T)$ ,  $I_{Fe}(T)$ і  $I_b(T)$  [8], у відповідність з якими було проведено розрахунок за ф-лам (6)-(7).

The Journal of V.N. Karazìn Kharkiv National University. Series "Physics" lss. 37, 2022 Вісник ХНУ імені В.Н. Каразіна, серія «Фізика», вип. 37, 2022 Таким чином, межі Hashin-Shtrikman (формули (5)-(7)) можна використовувати для оцінки невідомої провідності однієї з фаз, якщо відомі об'ємні частки всіх фаз. Зазначені оцінки набувають особливого інтересу, якщо вони виконуються для кількох характеристик (наприклад, електро- та теплопровідність) [54] і в широкому інтервалі зміни будь-якого зовнішнього параметра (температури, тиску тощо).

#### висновки

Підсумовуючи отримані результати, можна сказати, що

для зразка електроконсолідованого композиту
 Fe-Ni концентраційна залежність коефіцієнта
 взаємної дифузії компонентів отримана методом
 растрової електронної мікроскопії має максимум
 при вмісті нікелю на рівні ~70 ат.%, тобто аналогічна
 концентраційна залежність коефіцієнта взаємної
 дифузії в сплавах Fe-N;

- значення коефіцієнта взаємної дифузії в електроконсолідованому композиті Fe-Ni істотно більше, ніж у сплаві аналогічного складу, що вказує на ймовірний вплив технології SPS (тиск і струм вздовж одного напрямку при консолідації) спільно з можливістю дифузії за межами частинок композиту;

- у зразків еквіатомної системи Fe-Ni, отриманих методом електроконсолідації, електричний опір виявився суттєво нижчим, а теплопровідність суттєво вищою, ніж у аналогічних зразків, отриманих плавленням;

- температурні залежності опору еквіатомної

### СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

- 1. E.A. Perigo, B. Weidenfeller, P. Kollar and J. Fuzer. Applied Physics Reviews, 5 031301 (2018).
- O.V. Dobrovolskiy, M. Huth, V.A. Shklovskij and R.V. Vovk. Scientific Report, 7, 13740 (2017). https://doi.org/10.1038/ s41598-017-14232-z.
- A.L. Solovjov, E.V. Petrenko, L.V. Omelchenko, R.V. Vovk, I.L. Goulatis, A. Chroneos, Scientific Reports,9, 9274 (2019). https://doi.org/10.1038/s41598-019-45286-w
- R.V. Vovk, A.L Solovyov. Low Temperature Physics, 44, 81 (2018). https://doi.org/10.1063/1.5020905.
- O.V. Dobrovolskiy, R. Sachser, T. Brächer, T. Fischer, V.V. Kruglyak, R.V. Vovk, V.A. Shklovskij, M. Huth, B. Hillebrands, and A.V. Chumak. Nature Physics. 15, 477 (2019).
- M.A. Hadi, R.V. Vovk and A. Chroneos. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 27, 11925-11933 (2016). https://doi.org/10.1007/s10854-016-5338-z
- O.V. Dobrovolskiy, V.M. Bevz, M.Yu. Mikhailov,
   O.I. Yuzephovich, V.A. Shklovskij, R.V. Vovk,

системи Fe-Ni та металів Fe та Ni можуть бути з високою точністю апроксимовані співвідношеннями (1)-(2) у всьому інтервалі 4,2–300 К;

- розсіювання електронів на фононах обумовлено міжзонними s-d переходами;

- електронно-електронне розсіювання, як і розсіювання електронів на спинових хвилях відсутні;

- доданок  $b_0^{-}T^2$  у системі Fe-Ni викликано інтерференцією між непружним розсіюванням електронів на фононах та пружним розсіюванням електронів на межах та дефектах.

- побудовані межі Hashin-Shtrikman для провідностей трифазної системи.

- експериментальні результати за температурними залежностями в інтервалі 4.2–300 К електричного опору та теплопровідності електроконсолідованого композиту Fe0.50Ni0.50 знаходяться всередині цих кордонів, якщо третьою фазою вважати міжзерне середовище, яке є сплавом із середнім складом Fe<sub>0.50</sub>Ni<sub>0.50</sub>.

- зіставлення кордонів Hashin-Shtrikman з експериментальними результатами за різних температур дозволяє оцінювати невідомі провідності однієї з фаз.

#### КОНФЛІКТ ІНТЕРЕСІВ

Автори повідомляють про відсутність конфлікту інтересів.

#### REFERENCES

- 1. E E.A. Perigo, B. Weidenfeller, P. Kollar and J. Fuzer. Applied Physics Reviews, 5 031301 (2018).
- O.V. Dobrovolskiy, M. Huth, V.A. Shklovskij and R.V. Vovk. Scientific Report, 7, 13740 (2017). https://doi.org/10.1038/ s41598-017-14232-z
- A.L. Solovjov, E.V. Petrenko, L.V. Omelchenko, R.V. Vovk, I.L. Goulatis, A. Chroneos, Scientific Reports,9, 9274 (2019). https://doi.org/10.1038/s41598-019-45286-w
- R.V. Vovk, A.L Solovyov. Low Temperature Physics, 44, 81 (2018). https://doi.org/10.1063/1.5020905
- O.V. Dobrovolskiy, R. Sachser, T. Brächer, T. Fischer, V.V. Kruglyak, R.V. Vovk, V.A. Shklovskij, M. Huth, B. Hillebrands, and A.V. Chumak. Nature Physics. 15, 477 (2019).
- M.A. Hadi, R.V. Vovk and A. Chroneos. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 27, 11925 (2016) https:// doi.org/10.1007/s10854-016-5338-z
- O.V. Dobrovolskiy, V.M. Bevz, M.Yu. Mikhailov,
   O.I. Yuzephovich, V.A. Shklovskij, R.V. Vovk,

M.I. Tsindlekht, R. Sachser, and M. Huth. Nature Communications, 9, 4927 (2018). https://doi.org/10.1038/ s41467-018-07256-0.

- A.L. Solovjov, L.V. Omelchenko, E.V. Petrenko, R.V. Vovk, V.V Khotkevych, and A. Chroneos. Scientific Reports, 9, 20424 (2019). https://doi.org/10.1038/s41598-019-55959-1
- N. Kuganathan, A. Kordatos, M.E. Fitzpatrick, R.V. Vovk, A. Chroneos. Solid State Ionics, 327, 93 (2018).
- N. Kuganathan, P. Iyngaran, R. Vovk, and A. Chroneos. Scientific Reports, 9, 4394 (2019). https://doi.org/10.1038/ s41598-019-40878-y
- LiA., Zhu Z., Liu Y., Hu J. Materials Research Bulletin, 110845 (2020). https://doi.org/10.1016/j.materresbull.2020.110845
- Nagayama T., Yamamoto T., Nakamura T. In SID Symposium Digest of Technical Papers (v. 48, № 1, p. 527), 37, 3 (2017, May). https://doi.org/10.1002/sdtp.11692
- Liu J., Liu H., Tian X., Yang H., & Hao J. Journal of Alloys and Compounds, 822, 153708 (2020). https://doi. org/10.1016/j.jallcom.2020.153708
- Chen T., Yu J., Ma C., Bikane K., & Sun L. Chemosphere, 248, 125964 (2020). https://doi.org/10.1016/j. chemosphere.2020.125964
- Cai N., Yang H., Zhang X., Xia S., Yao. D., Bartocci P., & Williams P.T.. Waste Management, 109, 119-126 (2020). https://doi.org/10.1016/j.wasman.2020.05.003
- Zhang Z., Cong L., Yu Z., Qu L., & Huang W. Materials Today Energy, 16, 100387 (2020). https://doi.org/10.1016/j. mtener.2020.100387
- Wu Y., Yi Y., Sun Z., Sun H., Guo T., Zhang M., ... & Sun J. Chemical Engineering Journal, 390, 124515 (2020). https:// doi.org/10.1016/j.cej.2020.124515
- Fan A., Qin C., Zhang X., Yang J., Ge J., Wang S., ... & Dai X. Journal of Materials Chemistry A, 7 (42), 24347-24355 (2019). https://doi.org/10.1039/C9TA08594G
- Zhang G., Wang G., Liu H., Qu J., & Li J. Nano Energy, 43, 359-367 (2018). https://doi.org/10.1016/j. nanoen.2017.11.035
- Ji L., Zhang L., Yang X., Zhu X., & Chen L. Dalton Transactions, 49(13), 4146 (2020). https://doi.org/10.1039/ D0DT00230E
- Gao S., Wang H., Wang X., Liu H., He T., Wang Y., ... & Yan M. Journal of Alloys and Compounds, 154631 (2020). https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2020.154631
- Sarkar S., Biswas A., Purkait T., Das M., Kamboj N., & Dey R. S. Inorganic Chemistry, 59(7), 5194-5205 (2020). https://doi.org/10.1021/acs.inorgchem.0c00446
- Zhu X., Zhang D., Chen C.J., Zhang Q., Liu R.S., Xia Z., ... & Lu X. Nano Energy, 71, 104597 (2020). https://doi. org/10.1016/j.nanoen.2020.104597
- Goto S., Kura H., Watanabe E., Hayashi Y., Yanagihara H., Shimada Y., ... & Kita E. Scientific reports, 7(1), 1-7 (2017). https://doi.org/10.1038/s41598-017-13562-2
- 25. Kurichenko V.L., Karpenkov D.Y., Karpenkov A.Y., Lyakhova M.B., & Khovaylo V.V. Journal of Magnetism

M.I. Tsindlekht, R. Sachser, and M. Huth. Nature Communications, 9, 4927 (2018). https://doi.org/10.1038/ s41467-018-07256-0

- A.L. Solovjov, L.V. Omelchenko, E.V. Petrenko, R.V. Vovk, V.V Khotkevych, and A. Chroneos. Scientific Reports, 9, 20424 (2019). https://doi.org/10.1038/s41598-019-55959-1
- N. Kuganathan, A. Kordatos, M.E. Fitzpatrick, R.V. Vovk, A. Chroneos. Solid State Ionics, 327, 93 (2018).
- N. Kuganathan, P. Iyngaran, R. Vovk, and A. Chroneos. Scientific Reports, 9, 4394 (2019). https://doi.org/10.1038/ s41598-019-40878-y
- LiA., Zhu Z., Liu Y., Hu J. Materials Research Bulletin, 110845 (2020). https://doi.org/10.1016/j.materresbull.2020.110845
- Nagayama T., Yamamoto T., Nakamura T. In SID Symposium Digest of Technical Papers (v. 48, № 1, p. 527), 37, 3 (2017, May). https://doi.org/10.1002/sdtp.11692
- Liu J., Liu H., Tian X., Yang H., & Hao J. Journal of Alloys and Compounds, 822, 153708 (2020). https://doi. org/10.1016/j.jallcom.2020.153708
- Chen T., Yu J., Ma C., Bikane K., & Sun L. Chemosphere, 248, 125964 (2020). https://doi.org/10.1016/j. chemosphere.2020.125964
- Cai N., Yang H., Zhang X., Xia S., Yao. D., Bartocci P., & Williams P.T. Waste Management, 109, 119 (2020). https:// doi.org/10.1016/j.wasman.2020.05.003
- Zhang Z., Cong L., Yu Z., Qu L., & Huang W. Materials Today Energy, 16, 100387 (2020). https://doi.org/10.1016/j. mtener.2020.100387
- Wu Y., Yi Y., Sun Z., Sun H., Guo T., Zhang M., ... & Sun J. Chemical Engineering Journal, 390, 124515 (2020). https:// doi.org/10.1016/j.cej.2020.124515
- Fan A., Qin C., Zhang X., Yang J., Ge J., Wang S., ... & Dai X. Journal of Materials Chemistry A, 7 (42), 24347 (2019). https://doi.org/10.1039/C9TA08594G
- Zhang G., Wang G., Liu H., Qu J., & Li J. Nano Energy, 43, 359 (2018). https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2017.11.035
- Ji L., Zhang L., Yang X., Zhu X., & Chen L. Dalton Transactions, 49(13), 4146 (2020). https://doi.org/10.1039/ D0DT00230E
- Gao S., Wang H., Wang X., Liu H., He T., Wang Y., ... & Yan M. Journal of Alloys and Compounds, 154631 (2020). https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2020.154631
- Sarkar S., Biswas A., Purkait T., Das M., Kamboj N., & Dey R. S. Inorganic Chemistry, 59(7), 5194 (2020). https:// doi.org/10.1021/acs.inorgchem.0c00446
- Zhu X., Zhang D., Chen C.J., Zhang Q., Liu R.S., Xia Z., ... & Lu X. Nano Energy, 71, 104597 (2020). https://doi. org/10.1016/j.nanoen.2020.104597
- Goto S., Kura H., Watanabe E., Hayashi Y., Yanagihara H., Shimada Y., ... & Kita E. Scientific reports, 7(1), 1-7 (2017). https://doi.org/10.1038/s41598-017-13562-2
- Kurichenko V.L., Karpenkov D.Y., Karpenkov A.Y., Lyakhova M.B., & Khovaylo V.V. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 470, 33 (2019). https://doi.

The Journal of V.N. Karazìn Kharkiv National University. Series "Physics" lss. 37, 2022 Вісник ХНУ імені В.Н. Каразіна, серія «Фізика», вип. 37, 2022 and Magnetic Materials, 470, 33-37 (2019). https://doi. org/10.1016/j.jmmm.2017.11.040

- Bernard F.Le Gallet S., Spinassou N., Paris S., Gaffet E., Woolman J.N., and Munir Z.A. Science of Sintering, 36, 155 (2004).
- Скороход В.В., Рагуля А.В. Порошковая металлургия, 3-4, 3 (1994).
- Bourell D.L., Groza J.R. Powder Metallurgy. ASM Handbook, 7, 504 (1998).
- Гегузин Я.Е. Физика спекания. 2-е изд. перераб. и доп., М.: Наука (1984), 312 с.
- V.Y. Kodash, J.R. Groza, K.C. Cho, B.R. Klotz, R.J. Dowding. Materials Science and Engineering A 385, 367(2004). https://doi:10.1016/j.msea.2004.06.075
- Aslan E, Camuşcu N. and Birgören B. Materials & Design. 28, 5, 1618 (2007). https://doi.org/10.1016/j. matdes.2006.02.006
- Бокштейн Б.С. Диффузия в металлах, М.: Металлургия (1978), 248 с.
- Kohn A., Levasseur J., Philibert J., and Wanin M. Acta Met., 18, 163 (1970). https://doi.org/10.1016/0001-6160(70)90080-5
- Угасте Ю.Э., Коденцов А.А. и ван Лоо Ф. The Physics of Metals and Metallography, 88(6), 88 (1999). https://www. researchgate.net/publication/279625762
- Badia M., Interdiffusion of Fe and the Transition Metals, Ph.D. Thesis, Univ. Nancy France (1969), 85 p.
- J.I. Goldstein, R.E. Hanneman and R.E. Ogilvie, Trans. metall. Soc. AMIE, 233, 812 (1965).
- Berman R. Thermal Conduction of Solids. Clarendon Press. Oxford. 1976.
- 38. Ho C.Y. et al. J. Phys. Chem. Ref. Data 12, 183 (1983).
- Ho C.Y., Ackerman M.W., Wu K.Y., Oh S.G. & Havill T.N. J. Phys. Chem. Ref. Data 7, 959 (1978).
- А. М. Ермолаев, Б. А. Мерисов, В.И. Хоткевич, ФММ, 24,1104 (1967).
- Б.А. Мерисов, Г.Я. Хаджай, П.Н. Вьюгов, О.Е. Кожевников. Metallofiz. Noveishie Tekhnol., 33, 301 (2011).
- В.А. Перваков. Низкотемпературная теплопроводность металлов с дефектами. Харьков: Гос. спец. изд-во «Основа». 1993.
- 43. Ю. Каган, А. П. Жернов, ЖЭТФ, 50,1107 (1966).
- 44. А. М. Ермолаев, ФММ, 23, 813 (1967).
- Jin K., Sales B., Stocks G. et al. Sci Rep., 6, 20159 (2016). https://doi.org/10.1038/srep20159
- Rossiter P.L. The Electrical Resistivity of Metals and Alloys. Cambridge UniversityPress, 1987.
- 47. Z. Hashin and S. Shtrikman. J. Appl. Phys., 33, 3125 (1962).
- 48. Wilson A.H. Proc. Roy. Soc. (London) A 167, 580 (1938).
- 49. Colquitt. Journal of applied Physics, 36, 8 (1965).
- 50. G.W. Webb. Phys. Rev., 181, 1127 (1969).
- 51. Banerjee S. & Raychaudhuri A.K. Phys. Rev., B 50, 8195 (1994).

org/10.1016/j.jmmm.2017.11.040

- Bernard F.Le Gallet S., Spinassou N., Paris S., Gaffet E., Woolman J.N., and Munir Z.A. Science of Sintering, 36, 155 (2004).
- Skorokhod V.V., Ragulya A.V. Powder metallurgy, 3-4, 3(1994). (In Russian).
- Bourell D.L., Groza J.R. Powder Metallurgy. ASM Handbook. 7, 504 (1998).
- 29. Geguzin Ya.E. Physics of sintering. 2nd ed., processed and additional, M.: Science (1984), 312 p. (In Russian).
- V.Y. Kodash, J.R. Groza, K.C. Cho, B.R. Klotz, R.J. Dowding. Materials Science and Engineering A 385, 367 (2004). https://doi.org/10.1016/j.msea.2004.06.075
- Aslan E, Camuşcu N. and Birgören B. Materials & Design. 28, Is. 5, 1618 (2007). https://doi.org/10.1016/j. matdes.2006.02.006
- Bokshtein B.S. Diffusion in metals, M.: Metallurgy (1978), 248 p. (In Russian).
- Kohn A., Levasseur J., Philibert J., and Wanin M. Acta Met., 18, 163 (1970). https://doi.org/10.1016/0001-6160(70)90080-5
- Ugaste Yu.E., Kodentsov A.A. and van Loo F. The Physics of Metals and Metallography, 88(6), 88 (1999). (In Russian). https://www.researchgate.net/publication/279625762
- 35. Badia M., Interdiffusion of Fe and the Transition Metals, Ph.D. Thesis, Univ. Nancy, France (1969), 85 p. (In French)
- J.I. Goldstein, R.E. Hanneman and R.E. Ogilvie, Trans. metall. Soc. AMIE, 233, 812 (1965).
- Berman R. Thermal Conduction of Solids. Clarendon Press. Oxford. 1976.
- 38. Ho C.Y. et al. J. Phys. Chem. Ref. Data 12, 183 (1983).
- Ho C.Y., Ackerman M.W., Wu K.Y., Oh S.G. & Havill T.N. J. Phys. Chem. Ref. Data 7, 959 (1978).
- A.M. Ermolaev, B.A. Merisov, V.I. Khotkevich, FMM, 24, 1104 (1967).
- B.A. Merisov, G.Ya. Khadzhai, P.N. Vyugov, O.E. Kozhevnikov. Metallofiz. Noveishie Tekhnol., 33, 301 (2011).
- V.A. Pervakov. Low-temperature thermal conductivity of metals with defects. Kharkov: State. specialist. publishing house «Osnova».(1993).
- 43. Yu. Kagan, A.P. Zhernov, JETP, 50, 1107 (1966).
- 44. A.M. Ermolaev, FMM, 23, 813 (1967).
- Jin K., Sales B., Stocks G. et al. Sci Rep 6, 20159 (2016). https://doi.org/10.1038/srep20159
- Rossiter P.L. The Electrical Resistivity of Metals and Alloys. Cambridge UniversityPress, 1987.
- 47. Z. Hashin and S. Shtrikman. J. Appl. Phys., 33, 3125 (1962).
- 48. Wilson A.H. Proc. Roy. Soc. (London) 167, 580–593 (1938).
- 49. L. Colquitt. Journal of applied Physics, 36, 8 (1965).
- 50. G.W. Webb. Phys. Rev. 181, 1127 (1969).
- Banerjee S. & Raychaudhuri A.K. Phys. Rev. B 50, 8195 (1994).
- 52. Kao Y. et al. J. Alloy. Comp. 509, 1607-1614 (2011).

### Л.О. Пащенко, В.В. Богданов, Р.В. Вовк, С.В. Дукаров, М.В. Кислиця, С.І. Петрушенко, В.М. Сухов, Г.Я. Хаджай, І.Л. Гулатіс, Е.С. Геворкян, С.Р. Вовк, А.Фехер, Джуньі Ду, І.Н.Латошинська

- 52. Kao Y. et al. J. Alloy. Comp. 509, 1607 (2011).
- О.А. Гавренко, Б.А. Мерисов, Г.Я. Хаджай. Металлофизика, 17, 11, 51 (1995).
- J.M. Ziman. Electrons and Phonons. The Theory of Transport Phenomena in Solids. Oxford at the Clarendon Press, 1960.
- N.V. Volkenshtein, V.P. Dyakina, and V.E. Startsev. Phys. Stat. Sol. (b) 57, 9 (1973).
- J.-F. Lin and J.P Bird, L. Rotkina, A. Sergeev and V. Mitin. App. Phys. Lett., 84, 19, 3828 (2004).
- S.S. Yeh, J.J. Lin, Jing Xiunian, Zhang Dianlin. Phys. Rev. B, 72, 024204 (2005).
- M.Yu. Reizer and A.V. Sergeev. Zh. Eksp. Teor. Fiz. 92, 2291 (1987) [Sov. Phys. JETP 65 (6), 1291 (1987)].
- 59. Y. Tanji. Journal of the Physical Society of Japan, 30, 1, 133 (1971).
- Bernard F.Le, Gallet S., Spinassou N., Paris S., Gaffet E., Woolman J.N., and Munir Z.A. Science of Sintering., 36, 155 (2004).
- 61. Bourell D.L., Groza J.R. Powder Metallurgy. ASM Handbook, 7, 504 (1998).
- Aslan E, Camuşcu N. and Birgören B. Materials & Design, 28, Is. 5, 1618 (2007). https://doi.org/10.1016/j. matdes.2006.02.006
- Z. Hashin, S. Shtrikman. Journal of Applied Physics 33, 10, 3125 (1962). https://doi.org/10.1063/1.1728579
- P.L. Rossiter. Cambridge University Press, 1987. doi:10.1017/CBO9780511600289
- Г. Хаджай, С. Вовк, Р. Вовк, Э. Геворкян, Н. Зубенко, М. Кислица, В. Чишкала, А. Feher, Р. Kollar, J. Fuzer. ФНТ, 46, 9, 1110 (2020).
- 66. Ho C.Y. et al. J. Phys. Chem. Ref. Data 12, 183 (1983).
- Ho C.Y., Ackerman M.W., Wu K.Y., Oh S.G. & Havill T.N. J. Phys. Chem. Ref. Data 7, 959 (1978).
- Jin K., Sales B., Stocks G. et al. Sci Rep., 6, 20159 (2016). https://doi.org/10.1038/srep20159
- V.V. Bogdanov, R.V. Vovk, S.V. Dukarov, M.V. Kislitsa, S.I. Petrushenko, V.N. Sukhov, G.Ya. Khadzhai, Y.L. Goulatis, S.R. Vovk, E.S. Gevorkyan, A. Feher, P. Kollar, J. Fuzer, J.N. Latosińska. Acta Physica Polonica, 139, 1, 62 (2021).

- O.A. Gavrenko, B.A. Merisov, G.Ya. Hajay. Metal physics, 17, 11, 51 (1995). (In Russian).
- J.M. Ziman. Electrons and Phonons. The Theory of Transport Phenomena in Solids. Oxford at the Clarendon Press, 1960.
- N.V. Volkenshtein, V.P. Dyakina and V.E. Startsev. Phys. Stat. Sol. (b), 57, 9 (1973).
- J.-F. Lin and J.P Bird, L. Rotkina, A. Sergeev and V. Mitin. App. Phys. Lett., 84, 19, 3828 (2004).
- S.S. Yeh, J.J. Lin, Jing Xiunian, Zhang Dianlin. Phys. Rev., B 72, 024204 (2005).
- M.Yu. Reizer and A.V. Sergeev. Zh. Eksp. Teor. Fiz. 92, 2291 (1987) [Sov. Phys. JETP 65 (6), 1291 (1987)].
- Y. Tanji. Journal of the Physical Society of Japan, 30, 1, 133 (1971).
- Bernard F.Le, Gallet S., Spinassou N., Paris S., Gaffet E., Woolman J.N., and Munir Z.A. Science of Sintering., 36, 155 (2004).
- 61. Bourell D.L., Groza J.R. Powder Metallurgy, ASM Handbook, 7, 504 (1998).
- Aslan E, Camuşcu N. and Birgören B. Materials & Design. 28, 5, 1618 (2007). https://doi.org/10.1016/j. matdes.2006.02.006
- Z. Hashin, S. Shtrikman. Journal of Applied Physics 33, 10, 3125 (1962). https://doi.org/10.1063/1.1728579
- 64. P.L. Rossiter. Cambridge University Press, 1987. doi:10.1017/CBO9780511600289
- G. Khadzhay, S. Vovk, R. Vovk, E. Gevorkyan, N. Zubenko, M. Kislitsa, V. Chishkala, A. Feher, P. Kollar, J. Fuzer. FNT, 46, 9, p. 1110 (2020). (In Russian).
- 66. Ho C.Y. et al. J. Phys. Chem. Ref. Data 12, 183 (1983).
- Ho C.Y., Ackerman M.W., Wu K.Y., Oh S.G. & Havill T.N. J. Phys. Chem. Ref. Data 7, 959 (1978).
- Jin K., Sales B., Stocks G. et al. Sci Rep., 6, 20159 (2016). https://doi.org/10.1038/srep20159
- V.V. Bogdanov, R.V. Vovk, S.V. Dukarov, M.V. Kislitsa, S.I. Petrushenko, V.N. Sukhov, G.Ya. Khadzhai, Y.L. Goulatis, S.R. Vovk, E.S. Gevorkyan, A. Feher, P. Kollar, J. Fuzer, J.N. Latosińska. Acta Physica Polonica, 139, 1, 62 (2021).

## PROCESSES OF CHARGE, MASS AND HEAT TRANSFER IN FENI COMPOSITE L.O. Pashchenko<sup>1</sup>, V.V. Bogdanov<sup>1</sup>, R.V. Vovk<sup>1</sup>, S.V. Dukarov<sup>1</sup>, M.V. Kyslytsia<sup>1</sup>, S.I. Petrushenko<sup>1</sup>, V.M. Sukhov<sup>1</sup>, G.Ya. Hadzhai<sup>1</sup>, I.L. Gulatis<sup>1</sup>, E.S. Gevorkyan<sup>2</sup>, S.R. Vovk<sup>2,3</sup>, A. Feher<sup>3</sup>, Junyi Du<sup>4</sup>, J.N. Latosińska<sup>5</sup>

<sup>1</sup>V.N. Karazin Kharkiv National University, 4 Svobody Sq., Kharkiv 61022, Ukraine <sup>2</sup>Ukrainian State University of Railway Transport, 7 Feierbakh Sq., Kharkiv 61050, Ukraine <sup>3</sup>Centre of Low Temperature Physics, Faculty of Science,P.J. Safarik University, Park Angelinum 9, 041 54 Kosice, Slovakia

<sup>4</sup>School of Mathematical Sciences, Luoyang Normal University, Luoyang 471934, China <sup>5</sup>Adam Mickiewicz University, Umultowska 85,61-614 Poznan, Poland rvvovk2017@gmail.com

Submitted August 28, 2022; Revised September 29, 2022; Accepted October 25, 2022

The paper presents a study of the processes of mutual diffusion in the binary system Fe - Ni (obtained by the electrocondensation of nickel and iron powders) by the method of X-ray energy dispersive spectroscopy, as well as the processes of thermal and electrical conductivity in the temperature range of 5-300 K. Well-separated regions of almost pure iron and nickel were revealed . The nickel content, estimated by the concentration dependence of the mutual diffusion coefficient, which determines the kinetics of the process of homogenization of the electroconsolidated sample of the Fe - Ni composite, was  $\sim 70$  at. %. The value of the mutual diffusion coefficient of the electroconsolidated Fe - Ni composite is significantly higher than that of an alloy of a similar composition, which is probably the result of the influence of SPS technology (pressure and current in one direction during consolidation), as well as a significant contribution of grain boundary diffusion mass transfer in the composite. It was established that the electrical and thermal conductivity of the electroconsolidated sample is significantly higher than that of samples of the same composition obtained by melting. It was found that the temperature dependence of the electrical resistance of the electroconsolidated sample in the studied interval of 5-300 K is due to the scattering of electrons on defects and on phonons, and the scattering of electrons on phonons can be approximated with high accuracy by the Bloch-Gruneisen-Wilson ratio. The paper shows that the experimental data on the temperature dependence of the effective electrical resistance and thermal conductivity in the range 4.2-300 K of the electroconsolidated Fe0.50Ni0.50 composite are within the Hashin-Shtrikman limits for the conductivities of a three-phase system. The components of the system are pure Fe and Ni, and the intergranular medium in the form of an alloy with an average composition close to Fe0.50Ni0.50 is considered as the third phase.

*Keywords*: electroconsolidated composite, low temperatures, electrical resistance, thermal conductivity, Hashin-Shtrikman limits, three-phase system, intergranular environment.