

Doktori (PhD) értekezés tézisei

Diffúzió és szilárdtest-reakciók nanoskálán
való vizsgálatára alkalmas szimulációs
módszerek fejlesztése és alkalmazása

Tomán János

Témavezető: Dr. Erdélyi Zoltán



Debreceni Egyetem
Fizikai Tudományok Doktori Iskola

Debrecen, 2020

Bevezetés

„Olyan nagy a távolság az alapvető szabályok és a végső jelenségek között, hogy hihetetlen, hogy a jelenségek végső változatossága ilyen egyszerű szabályok folyamatos működéséből származhat.”

– Richard Feynman

A technológiai fejlődés érdekében egyre csökkenő alkatrészméretek folyamatosan új kihívások elé állítják az anyagtudományt. Bár egyre több vizsgálati módszer létezik, ami atomi feloldású információt képes adni a vizsgálni kívánt rendszerről, a mintaelőkészítés sokszor nem tudja garantálni az atomi szintű érintetlenségét a mintának, és a legjobb esetben is rendkívül nagy (humán)erőforrás igényű. A nanoskálán lejátszódó gyártási folyamatok esetében ráadásul olyan tényezőket is fokozottan figyelembe kell venni, amik nagyobb méretek esetében sokszor nem játszanak szerepet (pl. szabad felületek vagy a diffúzió következtében felépülő belső mechanikai feszültségek).

Mindezek miatt egyre fokozódó igény mutatkozik új, hatékony szimulációs módszerekre, amelyek képesek helyesen modellezni a nanoskálán lejátszódó atommozgási folyamatokat. Hagyományosan megkülönböztethetünk folytonos egyenleteket használó, úgynevezett kontinuum modelleket, illetve az anyag atomisztikus, diszkrét természetét követő, atomisztikus modelleket.

Jelen doktori értekezés célja, hogy bemutassa a nanoskálájú atommozgási folyamatok (diffúzió és szilárdtest-reakció) modellezésére alkalmas szimulációs modellek és programkódok fejlesztése és alkalmazása terén elért eredményeimet.

1. fejezet

Előzmények és célkitűzések

A Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Tanszékének munkatársai számos különböző kísérleti módszerrel vizsgálták a Si/Co/Si és Si/Ni/Si háromrétegű rendszerekben a szilicidképződés és -növekedés folyamatának korai szakaszát. A kísérleti eredmények azt mutatták, hogy a magnetronos porlasztásos mintakészítés során az a-Si/Ni/a-Si trirétegben a határfelületeken egy Ni_2Si kémiai összetételű, rendezetlen vagy amorf keverék keletkezik. Ez a fázis azonban vastagabb abban az esetben, amikor a mintakészítés során Ni-t porlasztanak a Si-ra, mint fordított esetben. Ez magyarázható a dinamikus szegregáció jelenségével. Azonban meglepő módon a hőkezelés során a kezdetben vastagabb vegyületfázis réteg gyorsabban növekedett, mint vékonyabb párja. Hasonló eredmények születtek korábban a Co-Si rendszer esetében is. Munkám célja az volt, hogy saját fejlesztésű, kontinuum modellt használó számítógépes szimulációkkal vizsgáljam, hogy a fázisnövekedés ezen korai szakaszában hogyan alakulhat ki ilyen, a stacionárius növekedéstől merőben eltérő viselkedés. Eredményeimet az 1. tézispontban foglaltam össze.

Szilárdtest-reakcióknál ismert jelenség, hogy bizonyos esetekben kezdetben a termékfázis a hőkezelési idővel arányosan vastagodik ($w \propto t$), és a fázisnövekedés csak később vált át a stacionárius növekedésre jellemző, az idő négyzetgyökével arányos, parabolikus növekedésre ($w \propto \sqrt{t}$, azaz $w^2 \propto t$). Munkám célja az volt, hogy ezt a lineáris-parabolikus fázisnövekedési átmenetet modellezni képes számítógépes módszert fejlesszek. Korábban publikálásra került egy új, könnyen átlátható, kinetikus számolási elv szilárdtest-reakciók szimulálására, ami nem igényel előre definiált határfelületeket a többfázisú mikrostruktúra leírásához. Az egyensúlyi fázisok az összetételfüggő kémiai poten-

ciáltól vagy a megfelelő termodinamikai faktortól vezérelve automatikusan keletkeznek benne. Ezt az eljárást fejlesztettem tovább a jelenség modellezéséhez. A szabadenergia-függvények közös érintőinek megkeresését és a kémiai potenciál kitáblázását, a kinetikai szimulációkat végző programokat és az eredményeket feldolgozó algoritmusokat is saját magam fejlesztettem. Elért eredményeimet a 2. tézispontban foglaltam össze.

A Kirkendall-jelenség vizsgálatára alkalmazott módszer a multifóliás eljárás, amellyel a diffúziós együttható a teljes koncentrációtartományban meghatározható a mintában elhelyezett markerek pozícióváltozásának vizsgálatával. Munkám során célom volt a módszer nanoskálára való kiterjeszthetőségét vizsgálni, különös tekintettel arra az esetre, ha a vakanciaforrások és -nyelők nem elég aktívak ahhoz, hogy fenntartsák az egyensúlyi vakanciakoncentrációt a folyamat során. A saját fejlesztésű programkódokkal elvégzett számítógépes kontinuummodell-számolásokkal elért eredményeimet a 3. tézispontban foglaltam össze.

A korábban publikált, háromdimenziós kinetikus átlagtér (KMF) modell nem volt alkalmas olyan folyamatok vizsgálatára, ami a rendszer valamilyen potenciálgáton való átjutását igényli (pl. fázisszeparáció nukleáció és növekedés útján). Ahhoz, hogy erre képessé váljon a módszer, célunk volt, hogy valamilyen módon sztochasztikussá tegyük a modellt. Az eljárás validálásához egy másik sztochasztikus módszerrel, kinetikus Monte Carlo szimulációval kapott eredményekkel vetettük össze az új eljárás által kapott adatokat. A modell fejlesztése nemzetközi kollaborációban, heteken keresztül, rendkívül intenzív, hatfős, személyes konzultációk során történt, úgyhogy a végeredményben nehezen elkülöníthető az egyes személyek hozzájárulása, de meghatározó módon részt vettem a modell kifejlesztésében, tökéletesítésében, tesztelésében és publikálásában. A munkatársakkal közösen elért eredményeimet a 4. tézispontban foglaltam össze.

2. fejezet

Új tudományos eredmények

1. tézis: Szilicidek aszimmetrikus növekedési kinetikájának modellezése

1.1.

A szilicid fázisok triréteg kísérletekben tapasztalt, aszimmetrikus növekedési kinetikájának megmagyarázása céljából számítógépes szimulációkat végeztem, amelyekhez a modellt és a programkódot magam fejlesztettem. A szakirodalomban található termodinamikai paramétereket felhasználva, azok minimális módosításával előállítottam a kísérletekben megjelenő szilárdoldat és szilicid fázisok szabadenergia-görbéit, amelyek közötti közös érintőket szintén saját fejlesztésű kóddal megkeresve, kitábláztam a különböző összetételekhez tartozó kémiai potenciál értékeket, amikkel a számítógépes szimulációk elvégeztetők voltak.[1]

1.2.

Az eredmények alapján megállapítottam, hogy a jelenségre egy lehetséges magyarázat, hogy azon az oldalon, amelyen a szilicid fázisnak megfelelő összetételű keverék vastagabb, ott a határfelületek is elmosottabbak. Ez, kiegészítve azzal, hogy a szilicid fázisokban a diffúzió gyorsabb (teljes keverési séma), a fázis gyorsabb kezdeti nukleációja mellett gyorsabb fázisnövekedést is okoz ugyanazon az oldalon.[1]

Az 1. tézis eredményeihez kapcsolódó közlemény: [1] .

2. tézis: Lineáris-parabolikus fázisnövekedési átmenet kinetikus modellezése

2.1.

Megmutattam a korábban publikált eljárást ért kritikák jogosulatlanságát és a módszer helyességét, valamint továbbfejlesztettem azt, hogy képes legyen a határfelületi gát hatásainak leírására. A szerzőtársakkal megtalált, egzakt analitikus megoldásokkal való összehasonlítással igazoltam a szimulációs módszer kvantitatív helyességét. A termékfázisok vastagsága nagy pontossággal megegyezik az analitikus és a kinetikus megoldás esetében.[2]

2.2.

A fázisdiagram kétfázisú, „tiltott” tartományaihoz rendelt, formálisan lecsökkentett diffúziós együttható segítségével reprodukáltam a modellel a határfelületi transzportgátak fizikai tulajdonságait. Megmutattam, hogy a bevezetett lassítási együttható egyenesen arányos a fenomenologikus gátgyütthatóval, ami lehetővé teszi a határfelületi gát rendkívül transzparens skálázását.[2]

2.3.

Levezettem a lassítási együttható és a lineáris növekedési ütem közötti kvantitatív összefüggést, ami a gyakran használt Deal–Grove-modellnél lényegesen pontosabb eredményt ad.[2]

A 2. tézis eredményeihez kapcsolódó közlemény: [2] .

3. tézis: Kirkendall-effektus szimulációja nanoskálán

3.1.

Megmutattam, hogy a Stuttgarti Egyetemen való együttműködés eredményeképp korábban publikált, kontinuum modell módosításával jól modellezhető a Kirkendall-effektus nanoskálán.[3, 4]

3.2.

Ráműtattam, hogy konstans Darken-féle kölcsönös diffúziós együttható, de a teljes összetétel tartományban konstans különbségű intrinszik diffúziós együtthatók esetén a korábban elfogadott analitikus megoldás hibás eltolódási sebességprofil ad.[3]

3.3.

Validáltam a fejlesztett modellt a Ni-Pd rendszeren végzett multifóliás kísérletek fordított szimulációjával, miszerint a bemeneti paramétereim az intrinszik diffúziós együtthatók voltak, és a szimuláció eredményei a markerek eltolódási profilja és az abból számolt sebességprofilja.[3]

3.4.

Megmutattam, hogy amennyiben a vakanciaforrások és -nyelők eloszlása és aktivitása nem teszi lehetővé a vakanciák egyensúlyi koncentrációjának fenntartását, akkor az eltolódásokból a hagyományos eljárással számolt sebességprofil nem felel meg a valóságnak, téves lokális maximumokat és minimumokat, és ezzel téves diffúziós együttható értékeket jósolhat.[3, 4]

A 3. tézis eredményeihez kapcsolódó közlemények: [3, 4] .

4. tézis: 3D sztochasztikus kinetikus átlagtér modell

4.1.

A háromdimenziós kinetikus átlagtér modellbe az ugrási frekvencián keresztül bevezetett Langevin-zaj segítségével, munkatársaimmal közösen kifejlesztettem egy új, sztochasztikus kinetikus átlagtér modellt, ami hangolható módon ötvözi a determinisztikus átlagtér modell és a sztochasztikus Monte Carlo módszer előnyeit. Több független programkód közül végül az általam C++ nyelven írt verziót tettük publikussá a projektnek szánt honlapon.[5]

4.2.

Munkatársaimmal megmutattam, hogy ideális szilárdoldatokban az ugrási frekvenciába bevezetett Langevin-zaj okozta összetételfluktuációk adott zajamplitúdó esetén megfeleltethetők meghatározott számú, független kinetikus Monte Carlo szimuláció végállapotának átlagolásával kapott eredményben megjelenő fluktuációknak. Megadtuk a matematikai összefüggést, ami egyértelmű kapcsolatot teremt a kiátlagolt Monte Carlo állapotok és a sztochasztikus kinetikus átlagtér modellben használt zajamplitúdó között.[5]

4.3.

Munkatársaimmal közösen megmutattam, hogy az eljárásba bevezetett sztochasztikusság képes a nukleációs gáton keresztüllendíteni a metastabil állapotban lévő fázisszeparálódó rendszert, és előidézni a kritikus nukleusz véletlenszerű kialakulását majd növekedését az egyensúlyi állapot eléréséig.[5]

A 4. tézis eredményeihez kapcsolódó közlemény: [5] .

Az értekezés témájában megjelent közlemények

- [1] B. Parditka, J. Tomán, C. Cserhádi, Zs. Jánosfalvi, A. Csik, I. Zizak, R. Feyerherm, G. Schmitz és Z. Erdélyi. “The earliest stage of phase growth in sharp concentration gradients”. *Acta Materialia* 87 (2015), 111–120. old.
- [2] J. J. Tomán, G. Schmitz és Z. Erdélyi. “Linear-parabolic transition in reactive diffusion – A concept of kinetic modelling”. *Computational Materials Science* 138 (2017), 183–191. old.
- [3] J. Tomán, C. Cserhádi, Y. Iguchi, Zs. Jánosfalvi és Z. Erdélyi. “Investigation of the role of vacancy sources and sinks on the Kirkendall-effect on the nanoscale”. *Thin Solid Films* 591 (2015), 363–367. old.
- [4] János J. Tomán, Yusuke Iguchi és Bence Gajdics. “Investigating Kirkendall Effect in Thin Films”. *Defect and Diffusion Forum* 369 (2016), 36–41. old.
- [5] Zoltán Erdélyi, Mykola Pasichnyy, Volodymyr Bezpalcuk, János J. Tomán, Bence Gajdics és Andriy M. Gusak. “Stochastic kinetic mean field model”. *Computer Physics Communications* 204 (2016), 31–37. old.



Nyilvántartási szám: DEENK/363/2020.PL
Tárgy: PhD Publikációs Lista

Jelölt: Tomán János

Doktori Iskola: Fizikai Tudományok Doktori Iskola

MTMT azonosító: 10038018

A PhD értekezés alapjául szolgáló közlemények

Idegen nyelvű tudományos közlemények külföldi folyóiratban (5)

1. **Tomán, J.**, Schmitz, G., Erdélyi, Z.: Linear-parabolic transition in reactive diffusion: a concept of kinetic modelling.
Comput. Mater. Sci. 138, 183-191, 2017. ISSN: 0927-0256.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.commatsci.2017.06.009>
IF: 2.53
2. **Tomán, J.**, Iguchi, Y., Gajdics, B. D.: Investigation Kirkendall Effect in Thin Films.
Defect Diffus. Forum. 369, 36-41, 2016. ISSN: 1012-0386.
3. Erdélyi, Z., Pasichnyy, M., Bezpalchuk, V., **Tomán, J.**, Gajdics, B. D., Gusak, A. M.: Stochastic kinetic mean field model.
Comput. Phys. Commun. 204, 31-37, 2016. ISSN: 0010-4655.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cpc.2016.03.003>
IF: 3.936
4. **Tomán, J.**, Cserhádi, C., Iguchi, Y., Jánosfalvi, Z., Erdélyi, Z.: Investigation of the role of vacancy sources and sinks on the Kirkendall-effect on the nanoscale.
Thin Solid Films. 591, 363-367, 2015. ISSN: 0040-6090.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2015.04.089>
IF: 1.761
5. Parditka, B., **Tomán, J.**, Cserhádi, C., Jánosfalvi, Z., Csik, A., Zizak, I., Feyerherm, R., Schmitz, G., Erdélyi, Z.: The earliest stage of phase growth in sharp concentration gradients.
Acta Mater. 87, 111-120, 2015. ISSN: 1359-6454.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.actamat.2014.11.048>
IF: 5.058





További közlemények

Magyar nyelvű tudományos közlemények hazai folyóiratban (1)

6. Cserhádi, C., Parditka, B., **Tomán, J.**, Csik, A., Erdélyi, Z.: Szilárdtest-reakciók nanoskálán.
Fiz. szle. 68 (2), 45-50, 2018. ISSN: 0015-3257.

Idegen nyelvű tudományos közlemények külföldi folyóiratban (6)

7. Gajdics, B. D., **Tomán, J.**, Erdélyi, Z.: An effective method to calculate atomic movements in 3D objects with tuneable stochasticity (3DO-SKMF).
Comput. Phys. Commun. 258, 1-7, 2021. ISSN: 0010-4655.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cpc.2020.107609>
IF: 3.627 (2019)
8. Zaporozhets, T. V., Taranovskyy, A., Jáger, G., Gusak, A. M., Erdélyi, Z., **Tomán, J.**: The effect of introducing stochasticity to kinetic mean-field calculations: Comparison with lattice kinetic Monte Carlo in case of regular solid solutions.
Comput. Mater. Sci. 171 (171), 1-7, 2020. ISSN: 0927-0256.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.commatsci.2019.109251>
IF: 2.863 (2019)
9. Gajdics, B. D., **Tomán, J.**, Zapolsky, H., Erdélyi, Z., Demange, G.: A multiscale procedure based on the stochastic kinetic mean field and the phase-field models for coarsening.
J. Appl. Phys. 126 (6), 1-12, 2019. ISSN: 0021-8979.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.5099676>
IF: 2.286
10. Gajdics, B. D., **Tomán, J.**, Erdélyi, Z.: Composition dependent gradient energy coefficient: How the asymmetric miscibility gap affects spinodal decomposition in Ag-Cu?
Calphad. 67, 1-8, 2019. ISSN: 0364-5916.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.calphad.2019.101665>
IF: 1.947
11. Gajdics, B. D., **Tomán, J.**, Misják, F., Radnóczy, G., Erdélyi, Z.: Spinodal decomposition in nanoparticles: Experiments and simulation.
Defect Diffus. Forum. 383, 89-95, 2018. ISSN: 1012-0386.
DOI: <http://dx.doi.org/10.4028/www.scientific.net/DDF.383.89>





**DEBRECENI
EGYETEM**

**DEBRECENI EGYETEM
EGYETEMI ÉS NEMZETI KÖNYVTÁR**

H-4002 Debrecen, Egyetem tér 1, Pf.: 400

Tel.: 52/410-443, e-mail: publikaciok@lib.unideb.hu

12. Featonby, D., **Tomán, J.**, Herendi, B.: Rolling cans: the answer.

Phys. Educ. 52 (4), 1-2, 2017. ISSN: 0031-9120.

DOI: <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6552/aa62e1>

A közlő folyóiratok összesített impakt faktora: 24,008

A közlő folyóiratok összesített impakt faktora (az értekezés alapjául szolgáló közleményekre):

13,285

A DEENK a Jelölt által az iDEa Tudóstérbe feltöltött adatok bibliográfiai és tudományometriai ellenőrzését a tudományos adatbázisok és a Journal Citation Reports Impact Factor lista alapján elvégezte.

Debrecen, 2020.12.01.



Short thesis for
the degree of doctor of philosophy (PhD)

Development and application of simulation
techniques for the investigation of diffusion
and solid-state reaction on the nanoscale

by János Tomán

Supervisor: Dr. Zoltán Erdélyi



University of Debrecen
Doctoral School of Physics

Debrecen, 2020

Introduction

„There’s so much distance between the fundamental rules and the final phenomena that it’s unbelievable that the final variety of phenomena can come from such a steady operation of simple rules.”

– Richard Feynman

With the advance of technology the decreasing part sizes raise a continuously evolving challenge for materials science. While more and more material characterization method is capable of giving atomic resolution information about the investigated system, the methods used for sample preparation often cannot guarantee that the material remains intact on the atomic level. And even in the best case the preparation requires expensive material and human resources. In case of the nanoscale production processes one has to consider effects that do not play a role on larger scales (e.g. free surfaces or the mechanical stress developing due to diffusion).

These factors increase the need for new, effective computer simulation methods capable of modelling the atom movements on the nanoscale. Traditionally we divide simulation techniques to two groups: methods using continuum equations, the so called continuum methods and the ones considering the atomistic, discrete nature of material, the so called atomistic models.

The goal of my thesis is to present my achievements in the field of development and application of models and program codes to simulate atom movements (diffusion and solid-state reaction) on the nanoscale.

Chapter 1

Background and goals

My colleagues at the Department of Solid State Physics of University of Debrecen investigated the early stages of formation and growth of silicide layers in trilayered Si/Co/Si and Si/Ni/Si systems using various experimental techniques. The experiments showed that during sample preparation by magnetron sputtering in case of the a-Si/Ni/a-Si system an amorphous or disordered mixture forms at the interfaces with Ni₂Si composition. This mixture phase is thicker when Ni is sputtered onto Si than vice versa. This can be explained by the phenomenon of dynamic segregation. Surprisingly, though, the phase being thicker at the beginning grew with a higher rate than its thinner pair. The earlier results on Co-Si system showed similar tendency. The goal of my work was to develop a continuum model and a computer software to investigate why during this very early stage of phase growth the experienced phenomena differ so much from the steady-state growth. My results are summarised in the 1st group of thesis statements.

It is a well-known phenomenon that during the early stages of some solid-state reactions the product phases grow linearly with the duration of heat-treatment ($w \propto t$) and only later change to the typical steady-state growth that is proportional to the square-root of time (often called as parabolic regime as $w \propto \sqrt{t}$ is equivalent to $w^2 \propto t$). The goal of my work was to develop a model and a computer software to simulate the linear-parabolic transition of phase-growth. A new, transparent, kinetic theory to model solid-state reactions was published earlier. This new model did not require pre-defined interfaces to describe multi-phase structures. The formation of equilibrium phases is governed by the composition-dependent thermodynamic factor. I developed this method further to model the linear-parabolic growth transition. I developed software codes to find the common-tangents of

the free-energy curves and to list the chemical potentials as well as the codes for running the kinetic simulations and processing the results. My results are summarised in the 2nd group of thesis statements.

One can investigate the Kirkendall phenomenon using the multi-foil method that gives information about the diffusion coefficient throughout the whole composition region via tracking the positions of inert markers in the sample. The goal of my work was to investigate the applicability of this technique on the nanoscale with special attention to the case when the vacancy sinks and sources are not active enough in the sample to maintain the equilibrium vacancy concentration. The results listed in the 3rd group of thesis statements are achieved by computer simulations using the model and computer code I developed.

The 3D kinetic mean-field (KMF) model published earlier was not capable of simulating processes that require the system to pass through a potential barrier (e.g. phase-separation via nucleation and growth). To make the method capable of simulating such processes we planned to introduce stochasticity in the model. To validate the developed method we compared its results to data from another stochastic technique, kinetic Monte Carlo. The model was developed in an international collaboration. The work was done through several weeks, during personal meeting with six participants. In the end result it is practically impossible to separate the individual contributions, but I was a core member of the team and participated in the development, testing and publishing of the model. The results achieved with the colleagues are described the 4th group of thesis statements.

Chapter 2

New scientific results

1st Modelling the asymmetric growth kinetics of silicides

1.1.

To explain the asymmetric growth kinetics of the silicide phases in experiments on tri-layer samples, I performed computer simulations for which the model and the program code were developed by myself. Using the available thermodynamic parameters in the literature with minor modifications, I created the free energy curves of the solid solution and compound phases seen in the experiments. Using another program code developed by myself I found the common tangent lines of these free energy curves and then list the composition-dependent chemical potential values that could be used to perform the simulations.

1.2.

Based on the simulation results, I concluded that one possible explanation to explain the asymmetric growth of silicides in tri-layer samples is that on the side where the stoichiometric mixture is thicker in the beginning, the interfaces are also wider, more diffuse. This, accompanied by the fact that diffusion is faster in the silicide phases (total mixing mode), results not only in faster nucleation of the product phases but also faster growth at the beginning.

Publication related to the results of the 1st group of thesis statements: [1].

2nd Kinetic modelling of the linear-parabolic transition in phase-growth

2.1.

I showed the unjustified nature of the critical comments about the original model, proved its correctness, and developed it further to be able to describe the effects of interface barriers. I showed the quantitative correctness of the simulation method by comparing its results to the exact analytical solutions found together with my colleagues. The thicknesses of the product phases match with a high degree of precision in the analytical and kinetic solutions.

2.2.

By using a formally lowered diffusion coefficient in the „forbidden” two-phase regions of the phase diagram, I reproduced in the model the physical properties of the interface transport barriers. I showed that the introduced deceleration coefficient is proportional to the phenomenological barrier coefficient, and this makes very transparent scalability of the interface barriers possible.

2.3.

I deduced the quantitative expression connecting the introduced deceleration coefficient and the linear growth rate, and it gives much more precise results than the often used Deal-Grove model.

Publication related to the results of the 2nd group of thesis statements: [2].

3rd Simulation of Kirkendall effect on the nanoscale

3.1.

I showed that the Kirkendall effect can be modelled on the nanoscale by a modified version of the continuum model that was published earlier and was developed in collaboration with the University of Stuttgart.

3.2.

I showed that previously accepted analytical solution gives erroneous marker shift velocity profile for two species with a constant difference in their intrinsic diffusion coefficients in the whole composition range with also constant Darken diffusion coefficient.

3.3.

I validated the developed model by the inverted simulation of the multifoil experimental results of the Ni-Pd system: that is I used the intrinsic diffusion coefficients as input parameters, and the simulation results were the marker displacement and the marker velocity profiles.

3.4.

I showed that if the vacancy sinks and sources cannot maintain the equilibrium vacancy concentration due to their distribution and activity, then the velocity profiles calculated in the usual way from the marker displacement profiles are different from the real velocity profiles. These derived profiles can show artificial local minima and maxima and, as a consequence, predict false diffusion coefficient values.

Publications related to the results of the 3rd group of thesis statements: [3, 4].

4th 3D stochastic kinetic mean-field model

4.1.

I developed with my colleagues a new, stochastic kinetic mean-field model by introducing a Langevin noise into the jump frequency of three-dimensional kinetic mean-field model. The new technique combines the advantages of the deterministic mean-field model and the stochastic Monte Carlo method in a tunable way. From multiple independent program variants, we published my C++ code on the project's website.

4.2.

Together with my colleagues, I showed that in ideal solutions the noise introduced in the jump frequency results in composition fluctuations that equal the inhomogeneities present in data calculated by averaging a finite number of independent kinetic Monte Carlo (KMC) states. We gave a direct mathematical relationship between the noise amplitude of the stochastic kinetic mean-field model and the averaged KMC states.

4.3.

I showed with my colleagues that the fluctuations we introduced into the method were able to overcome the nucleation barrier of a metastable phase separating system, form critical nuclei and grow them until the equilibrium state was reached.

Publication related to the results of the 4th group of thesis statements: [5].

Publications related to the dissertation

- [1] B. Parditka, J. Tomán, C. Cserhádi, Zs. Jánosfalvi, A. Csik, I. Zizak, R. Feyerherm, G. Schmitz, and Z. Erdélyi. “The earliest stage of phase growth in sharp concentration gradients”. In: *Acta Materialia* 87 (2015), pp. 111–120.
- [2] J. J. Tomán, G. Schmitz, and Z. Erdélyi. “Linear-parabolic transition in reactive diffusion – A concept of kinetic modelling”. In: *Computational Materials Science* 138 (2017), pp. 183–191.
- [3] J. Tomán, C. Cserhádi, Y. Iguchi, Zs. Jánosfalvi, and Z. Erdélyi. “Investigation of the role of vacancy sources and sinks on the Kirkendall-effect on the nanoscale”. In: *Thin Solid Films* 591 (2015), pp. 363–367.
- [4] János J. Tomán, Yusuke Iguchi, and Bence Gajdics. “Investigating Kirkendall Effect in Thin Films”. In: *Defect and Diffusion Forum* 369 (2016), pp. 36–41.
- [5] Zoltán Erdélyi, Mykola Pasichnyy, Volodymyr Bezpalcuk, János J. Tomán, Bence Gajdics, and Andriy M. Gusak. “Stochastic kinetic mean field model”. In: *Computer Physics Communications* 204 (2016), pp. 31–37.



Registry number:

DEENK/363/2020.PL

Subject:

PhD Publication List

Candidate: János Tomán

Doctoral School: Doctoral School of Physics

MTMT ID: 10038018

List of publications related to the dissertation

Foreign language scientific articles in international journals (5)

1. **Tomán, J.**, Schmitz, G., Erdélyi, Z.: Linear-parabolic transition in reactive diffusion: a concept of kinetic modelling.
Comput. Mater. Sci. 138, 183-191, 2017. ISSN: 0927-0256.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.commatsci.2017.06.009>
IF: 2.53
2. **Tomán, J.**, Iguchi, Y., Gajdics, B. D.: Investigation Kirkendall Effect in Thin Films.
Defect Diffus. Forum. 369, 36-41, 2016. ISSN: 1012-0386.
3. Erdélyi, Z., Pasichnyy, M., Bezpalchuk, V., **Tomán, J.**, Gajdics, B. D., Gusak, A. M.: Stochastic kinetic mean field model.
Comput. Phys. Commun. 204, 31-37, 2016. ISSN: 0010-4655.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cpc.2016.03.003>
IF: 3.936
4. **Tomán, J.**, Cserhádi, C., Iguchi, Y., Jánosfalvi, Z., Erdélyi, Z.: Investigation of the role of vacancy sources and sinks on the Kirkendall-effect on the nanoscale.
Thin Solid Films. 591, 363-367, 2015. ISSN: 0040-6090.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2015.04.089>
IF: 1.761
5. Parditka, B., **Tomán, J.**, Cserhádi, C., Jánosfalvi, Z., Csik, A., Zizak, I., Feyerherm, R., Schmitz, G., Erdélyi, Z.: The earliest stage of phase growth in sharp concentration gradients.
Acta Mater. 87, 111-120, 2015. ISSN: 1359-6454.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.actamat.2014.11.048>
IF: 5.058





List of other publications

Hungarian scientific articles in Hungarian journals (1)

6. Cserhádi, C., Parditka, B., **Tomán, J.**, Csik, A., Erdélyi, Z.: Szilárdtest-reakciók nanoskálán.
Fiz. szle. 68 (2), 45-50, 2018. ISSN: 0015-3257.

Foreign language scientific articles in international journals (6)

7. Gajdics, B. D., **Tomán, J.**, Erdélyi, Z.: An effective method to calculate atomic movements in 3D objects with tuneable stochasticity (3DO-SKMF).
Comput. Phys. Commun. 258, 1-7, 2021. ISSN: 0010-4655.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cpc.2020.107609>
IF: 3.627 (2019)
8. Zaporozhets, T. V., Taranovskyy, A., Jáger, G., Gusak, A. M., Erdélyi, Z., **Tomán, J.**: The effect of introducing stochasticity to kinetic mean-field calculations: Comparison with lattice kinetic Monte Carlo in case of regular solid solutions.
Comput. Mater. Sci. 171 (171), 1-7, 2020. ISSN: 0927-0256.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.commatsci.2019.109251>
IF: 2.863 (2019)
9. Gajdics, B. D., **Tomán, J.**, Zapolsky, H., Erdélyi, Z., Demange, G.: A multiscale procedure based on the stochastic kinetic mean field and the phase-field models for coarsening.
J. Appl. Phys. 126 (6), 1-12, 2019. ISSN: 0021-8979.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.5099676>
IF: 2.286
10. Gajdics, B. D., **Tomán, J.**, Erdélyi, Z.: Composition dependent gradient energy coefficient: How the asymmetric miscibility gap affects spinodal decomposition in Ag-Cu?
Calphad. 67, 1-8, 2019. ISSN: 0364-5916.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.calphad.2019.101665>
IF: 1.947
11. Gajdics, B. D., **Tomán, J.**, Misják, F., Radnóczy, G., Erdélyi, Z.: Spinodal decomposition in nanoparticles: Experiments and simulation.
Defect Diffus. Forum. 383, 89-95, 2018. ISSN: 1012-0386.
DOI: <http://dx.doi.org/10.4028/www.scientific.net/DDF.383.89>





**UNIVERSITY of
DEBRECEN**

**UNIVERSITY AND NATIONAL LIBRARY
UNIVERSITY OF DEBRECEN**

H-4002 Egyetem tér 1, Debrecen

Phone: +3652/410-443, email: publikaciok@lib.unideb.hu

12. Featonby, D., **Tomán, J.**, Herendi, B.: Rolling cans: the answer.

Phys. Educ. 52 (4), 1-2, 2017. ISSN: 0031-9120.

DOI: <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6552/aa62e1>

Total IF of journals (all publications): 24,008

Total IF of journals (publications related to the dissertation): 13,285

The Candidate's publication data submitted to the iDEa Tudóstér have been validated by DEENK on the basis of the Journal Citation Report (Impact Factor) database.

01 December, 2020

