

С. І. Дерев'янюкаспірант кафедри фізики, ННІ ІНФОТЕХ,
Черкаський національний університет імені Богдана Хмельницького, Черкаси, Україна,
derevianko.serhii@gmail.com

ORCID: 0000-0001-7015-1662

Ю. О. Ляшенкодоктор фіз.-мат. наук, професор, ННІ ІНФОТЕХ
Черкаський національний університет імені Богдана Хмельницького, Черкаси, Україна,
urico@ukr.net

УДК 621.762:669.715.29

DOI: 10.31651/2076-5851-2018-1-68-77

PACS 81.05.bx., 07.05.Tr, 64.70.kd,
82.40.ck, 66.30.-h, 66.30.Fq**МЕЗОСКОПІЧНА МОДЕЛЬ ДИФУЗІЙНОЇ ВЗАЄМОДІЇ ТА РОСТУ ФАЗ В СИСТЕМІ Cu-Sn***

В роботі проведено моделювання взаємної дифузії в системі Cu-Cu 8 ат.% Sn в залежності від форми міжфазного інтерфейсу. Модельний зразок представляє собою дифузійну пару Cu і Cu 8 ат.% Sn, який відпалюється за температури 741 °С. В проведеному моделюванні використано кінетично-термодинамічний підхід, що включає розрахунок дифузійних потоків, хімічних потенціалів та коефіцієнтів Онзагера для фаз системи Cu-Sn. Для цього за технологією CALPHAD були проведені розрахунки потенціалів Гіббса для чистих компонентів та твердого розчину системи Cu-Sn. Моделювання дифузійної еволюції в досліджуваному зразку дозволяє розрахувати концентраційні профілі, положення міжфазних меж, ширину дифузійної зони, оцінити зміну шорсткості міжфазної межі в ході дифузійної реакції.

Ключові слова: взаємна дифузія, потенціал Гіббса, міжфазна межа, дифузійний потік, хімічний потенціал.

1. Вступ

В мікроелектроніці з 20 століття активне використання отримав припій на основі Pb та Sn. З часом свинцевовмісні припої стали менше використовуватись через їхню екологічну шкідливість. Їх замінюють припоями на основі Sn з додаванням Ag. Оскільки для контактів використовують мідь, то процеси фазоутворення, дифузії та пороутворення в системі Cu-Sn активно досліджуються. Одна з найбільш частих причин відмов мікросхем пов'язана якраз з наявністю паяних контактів на основі мідь/олово [1-2] і викликано це, зокрема, особливостями росту проміжних фаз та пороутворенням в контактній зоні.

Попередня обробка поверхні міді або застосування різних способів осадження додаткових прошарків міді може впливати на результат реакції міді та олова. Різні типи обробки приводять до різної шорсткості інтерфейсу, зокрема середню амплітуду та середню довжину «вигинів» майбутньої міжфазної межі. В роботі [3] описано твердофазні реакції міді з оловом та експериментально досліджено пористість продуктів реакції в залежності від попередньої обробки мідної підкладки. Мідні підкладки готувалися шляхом електроосадження прошарків міді товщиною до 100 мкм на прокатних мідних пластинках. Показано, що товщини проміжних фаз, їх співвідношення, кількість і просторовий розподіл пор у продуктах реакції суттєво залежить від режиму електроосадження. Дефектність підкладок визначалась застосуванням різних режимів електроосадження. В роботах [4, 5] відпрацьовано технологію

* Статтю написано згідно з прикладною держбюджетною темою “Синтез наноструктурованих сплавів за осцилюючих напружень та їх застосування в новій технології з'єднання мікроелектронних компонентів” (номер державної реєстрації 0117U000577).

отримання прошарків електроосадженої в стаціонарному, імпульсному реверсному та стохастичному режимах міді на мідних підкладках. Описано застосування моделі генератора нелінійних коливань Чуа для побудови часового ряду стохастичних коливань напруги на електродах в околі двох стаціонарних значень. Для експериментів застосовано два значення напруги електроосадження, що розраховані з поляризаційної кривої для заданих умов електроосадження. Для проведення контрольованих процесів електроосадження створено апаратно-програмний комплекс (АПК). Методами рентгенодифракційного аналізу та електронної растрової мікроскопії проведено аналіз впливу стаціонарного та стохастичного режимів електролітичного осадження на структуру отриманих прошарків міді на мідних підкладках. Аналіз дифрактограм показав, що в отриманих після стаціонарного електроосадження міді зразках розмір зерен менший, порівняно з вихідними зразками текстурованої прокатої міді. Встановлено, що в стаціонарних режимах електроосадження утворюються кристаліти з переважною орієнтацією площин (111) та присутністю кристалітів з орієнтацією (220) та (200), що розміщені паралельно поверхні зразка. За електроосадження в імпульсному реверсному режимі встановлено, що в цих зразках переважає орієнтація площин зерен (220). В стохастичних режимах електроосадження формується майже структурно ідеальний полікристалічний прошарок міді. В цих зразках наявний повний спектр орієнтацій площин кристалітів (111), (220) та (200) в однакових пропорціях, що є подібним до структури порошкової міді.

Засобами растрової електронної мікроскопії показано, що зеренні структури нанесених в випадках стаціонарного та стохастичного режимів електролітичного осадження прошарків міді суттєво відрізняються за своєю морфологічною будовою [4, 5]. У випадку застосування стохастичної напруги осаджений прошарок міді складається з округлих монодисперсних зерен. За постійної напруги електроосадження формуються як зерна ламелярної структури, так і зерна неправильної форми значно більшого розміру, ніж у випадку застосування стохастичних режимів зміни напруги. Крім того в [5] було відмічено, що тип структури електроосаджених прошарків міді впливає на результат росту проміжних фаз в ході твердофазних реакцій в системі Cu-Sn.

Таким чином, результат твердофазних реакцій може залежати від шорсткості початкового інтерфейсу мідь-олово [3]. Одним з методів оцінки впливу шорсткості на структуру контактної зони є проведення чисельного моделювання цих процесів, що дозволяє оцінити структуру та склад дифузійної зони, положення міжфазних меж.

Метою роботи є розробка взаємоузгодженої 2D кінцево-різницевої чисельної схеми розрахунку росту фаз в дифузійній парі системи Cu-Sn в залежності від шорсткості початкового інтерфейсу.

2. Чисельні розрахунки, розв'язок прямої задачі дифузії

Дифузійні процеси та фазоутворення в системі Cu-Sn змодельовані в двохвимірному зразку. Він складається з системи квадратних комірок з певною концентрацією c_i одного з двох компонентів. Дифузійна еволюція в кожній з комірок залежить від концентрації в чотирьох сусідніх комірках (верхньої, нижньої, правої і лівої). Концентраційні потоки формують зміну концентрації центральної комірки, яка відбувається згідно рівняння:

$$\frac{\partial c(x, t)}{\partial t} = - \frac{\partial J_i}{\partial x}, \quad (1)$$

де $c_i(x, t)$ – концентрація i -го компонента (Sn), J_i – загальний потік компонента i через межу комірки зерна, що розраховується згідно виразу

$$J_i = J_i^u + J_i^d + J_i^l + J_i^r, \quad (2)$$

де $J_i^u, J_i^d, J_i^l, J_i^r$ – потоки відповідно з верхньої, нижньої, лівої та правої сусідніх комірок в центральну комірку (m, n) . Для розв'язку прямої задачі дифузії була використана кінцево-різницева схема:

$$c_i^{t+\Delta t} = c_i^t - \frac{\Delta t}{\Delta y} (J_i^u + J_i^d + J_i^l + J_i^r), \quad (3)$$

де $c_i^{t+\Delta t}$ – концентрація в наступний момент часу в комірці (m, n), c_i^t – концентрація в попередній момент часу в комірці (m, n), Δt – крок по часу, Δy – розмір комірки.

Для розрахунку потоків з кожної сусідньої комірки в розглядувану використовуються усереднені коефіцієнти Онзагера \bar{L} та приведені хімічні потенціали $\tilde{\mu}$

$$J_i^u = -\bar{L} \frac{\partial \tilde{\mu}}{\partial c} \quad (4)$$

В свою чергу $\tilde{\mu}$ розраховується за виразами: для твердих розчинів

$$\tilde{\mu} = \frac{\partial g^\alpha}{\partial c}, \quad (5)$$

де g^α – потенціал Гіббса на один атом для твердого розчину Cu-Sn.

У випадку попадання розрахункової точки по концентрації в двохфазну область вираз для приведеного хімічного потенціалу приймає вигляд

$$\tilde{\mu} = \frac{g_i^r(c_i^r) - g_i^l(c_i^l)}{c_i^r - c_i^l}, \quad (6)$$

де g_i^r, g_i^l – потенціали Гіббса на один атом для фаз, що формують двохфазну зону.

Усереднені коефіцієнти Онзагера $\bar{L}(n, m)$ для кожної з пар комірок модельного зразка визначаються за правилом [6]:

$$\bar{L}(n, m) = \frac{\tilde{L}(n, m) + \tilde{L}(n, m-1)}{2}, \quad (7)$$

Коефіцієнти Онзагера $\tilde{L}^{\alpha, \beta}$ для кожної з фаз розраховуються згідно виразу

$$\tilde{L}^{\alpha, \beta} = \frac{c_a D_b^{\alpha, \beta} + c_b D_a^{\alpha, \beta}}{kT} c_a c_b, \quad (8)$$

де c_a, c_b – атомні концентрації компонентів в фазі з урахуванням $c_a = 1 - c_b$; $D_a^{\alpha, \beta}, D_b^{\alpha, \beta}$ – власні коефіцієнти дифузії компонентів у відповідній фазі; k – стала Больцмана; T – температура в К.

3. Розрахунок потенціалу Гіббса в фазах системи Cu-Sn

Розрахунок енергії Гіббса твердого розчину α (fcc) Sn в Cu та рідкої фази проводили в рамках моделі заміщення, яка включає повну взаємну розчинність компонентів [8-11]. Молярна енергія Гіббса розраховувалась за виразом:

$$G_m^p = c_{Cu} G_{Cu}^p + c_{Sn} G_{Sn}^p + RT (c_{Cu} \ln(c_{Cu}) + c_{Sn} \ln(c_{Sn})) + {}^{ex}G_m^p \quad (9)$$

$${}^{ex}G_m^p = c_{Cu} c_{Sn} \left({}^0L^p c_{Cu} + {}^1L^p (c_{Cu} - c_{Sn}) + {}^2L^p (c_{Cu} - c_{Sn})^2 \right), \quad (10)$$

де c_{Cu}, c_{Sn} – молярні частки відповідних компонентів в твердому розчині, R – універсальна газова стала, T – температура, G_{Cu}^p та G_{Sn}^p – енергії Гіббса чистих компонентів, ${}^{ex}G_m^p$ описує енергію змішування, L^p – параметр, що відповідає додатковій взаємодії елементів у бінарній системі.

4. Результати і обговорення

Було проведено моделювання взаємної дифузії в системі Cu/Cu 8 мас. % Sn для лінійного та трьох шорстких початкових інтерфейсів, що є паралельними вісі x (моделі 1-4 на Рис. 1). Загальні розміри модельного зразка приймалися рівними 1050 мкм на 70 мкм, розмір комірки застосовувався рівним 3.5 мкм. Розміри контактної зони визначались як відстань між крайніми точками інтерфейсу по вісі y .

Типи і форми початкового інтерфейсу в розрахунковій системі Cu/Cu 8 ат. % Sn

Table 1

Types and forms of the initial interface in calculation system Cu / Cu 8 at. % Sn

№ моделі	Розміри контактної зони, мкм	Розміри виступів, мкм	Час, с
1	0	—	2450
2	7	7*7	2450
3	14	14*14	2450
4	28	28*35	2450

Для розрахунку дифузійної взаємодії використано коефіцієнти самодифузії D_{Sn}^* та D_{Cu}^* , які обчислювались за виразами [12]:

$$D_{Cu} = D_{Cu}^* \frac{V_m}{V_{Sn}} F(1 - W_{Cu}), \quad (11)$$

$$D_{Sn} = D_{Sn}^* \frac{V_m}{V_{Cu}} F(1 + W_{Sn}). \quad (12)$$

Для проведення обрахунків взято такі параметри: молярні об'єми чистих компонентів (V_{Sn} , V_{Cu}), молярний об'єм сплаву заданої концентрації (V_m), термодинамічний множник (F) та параметри, що пов'язані з впливом вакансійного вітру (W_{Cu} , W_{Sn}) [12]. Парціальні коефіцієнти дифузії для різних концентрацій застосовано зі статті [13]. Ці параметри були екстрапольовані на проміжок концентрації від 0 до 8 ат. % Sn інтервалу існування неперервного ряду твердих розчинів в системі Cu-Sn. Таким чином, отримано залежності парціальних коефіцієнтів дифузії від концентрації:

$$D_{Sn} = 1.867598 * 10^{-14} + 4.747036 * 10^{-13} * c_{Sn} + 9.640273 * 10^{-12} * (c_{Sn})^2, \quad (13)$$

$$D_{Cu} = 1.186953 * 10^{-14} + 2.296875 * 10^{-13} * c_{Sn} + 7.8125 * 10^{-13} * (c_{Sn})^2. \quad (14)$$

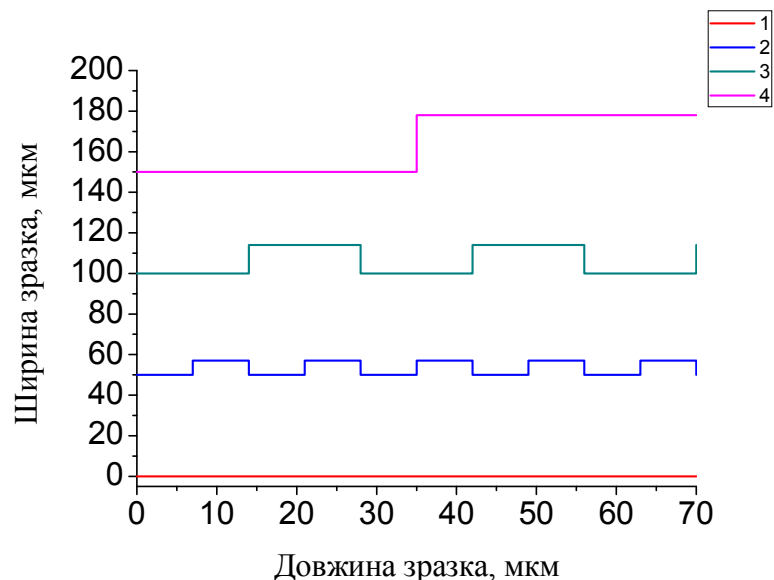


Рис. 1. Форми та розміри чотирьох початкових інтерфейсів в моделях дифузійної взаємодії.

Fig. 1. Forms and sizes of the 4 initial interfaces in models of diffusion interactions.

Моделювання в системі Cu/Cu 8 ат. % Sn проводилось для температури 741°C. На основі проведеного моделювання було побудовано концентраційні профілі Sn (Рис. 2). На Рис. 2 вказана усереднена концентрація по ширині зразка

$$\bar{c}_i = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n c(i, j), \quad (15)$$

де $c(i, j)$ – концентрація в комірці; n – кількість комірок в модельному зразку по ширині по вісі y .

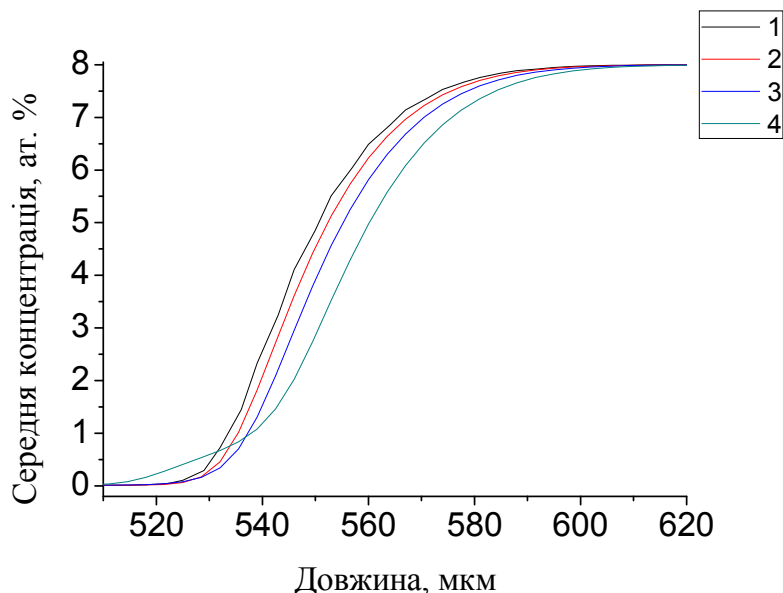


Рис. 2. Залежності усередненої концентрації (в ат. % Sn) в дифузійній зоні.
Fig. 2. Dependencies of the average concentration (in at. % Sn) in the diffusion zone.

Була розрахована ширина дифузійної зони в чотирьох моделях з різними типами початкових інтерфейсів для часу 2450 с. Дифузійна зона визначалась як область зразка, де середня концентрація знаходилась в межах від 0.5 до 7.5 ат. % Sn (див. Рис. 3).

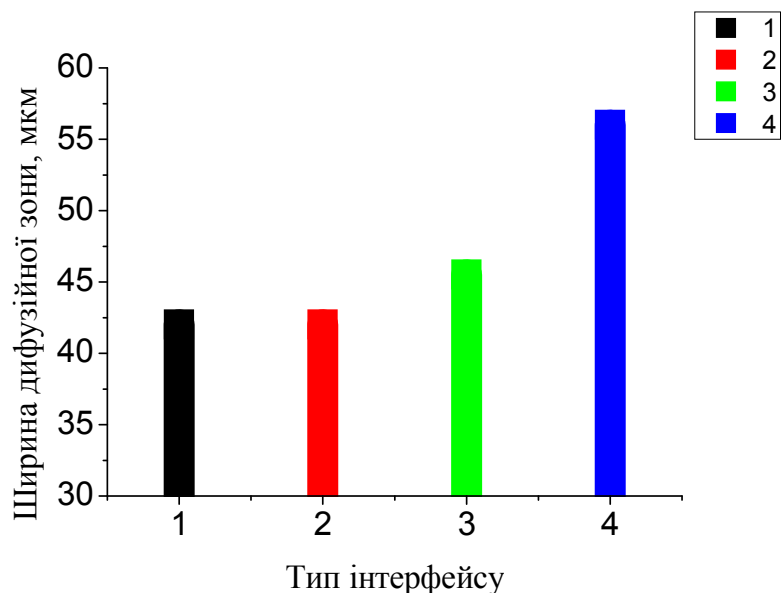


Рис. 3. Ширина дифузійної зони в зразках 1-4.
Fig. 3. The width of the diffusion zone in the samples 1-4.

Була проведена оцінка шорсткості початкових інтерфейсів (R^0) та інтерфейсів після дифузійного відпалу (див. Табл. 2). В результаті моделювання отримано дифузійні зони, що складаються з неперервного набору твердих розчинів різних концентрацій системи Cu-Sn (від 0 до 8 ат. % Sn).

Параметри шорсткості розраховувались для двох міжфазних меж, що визначались за концентрацій 0.5 ат. % Sn ($R^{0.5}$) та 7.5 ат. % Sn ($R^{7.5}$) відповідно. Розрахунки проводились

відносно положень середньої лінії \bar{y} для кожної з міжфазних меж за виразом $\bar{y} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i$. В

результаті розраховувались наступні параметри шорсткості міжфазних меж:

Середнє арифметичне відхилення від середньої лінії

$$R_a = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |y_i|, \quad (16)$$

Відхилення від середньої лінії

$$\Delta y_i = y_i - \bar{y}. \quad (17)$$

Середнє квадратичне відхилення від середньої лінії

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i^2}. \quad (18)$$

Максимальна глибина впадини відносно середньої лінії

$$R_v = \min \Delta y_i. \quad (19)$$

Максимальна висота піків відносно середньої лінії

$$R_p = \max \Delta y_i. \quad (20)$$

Максимальна висота профіля

$$R_t = R_v - R_p. \quad (21)$$

Коефіцієнт асиметрії інтерфейсу

$$R_{sk} = \frac{1}{nR_q^3} \sum_{i=1}^n \Delta y_i^3. \quad (22)$$

Коефіцієнт ексцесу інтерфейсу

$$R_{ku} = \frac{1}{nR_q^4} \sum_{i=1}^n \Delta y_i^4. \quad (23)$$

В Табл. 2 приведено розраховані параметри шорсткості, які вказують на те, що шорсткість міжфазної межі після дифузійного відпалу заданого модельного зразка зменшується для всіх типів інтерфейсу.

Таблиця 2

Параметри шорсткості інтерфейсів до і після дифузійної взаємодії в моделях 1-4

Table 2

Roughness parameters of interfaces before and after diffusion interaction in models 1-4

№	R_a^0	R_q^0	R_v^0	R_p^0	R_t^0	R_{sk}^0	R_{ku}^0
1	0	0	0	0	0	0	0
2	3.5	3.5	-3.5	3.5	7	-0.04762	1
3	7	7	-7	7	14	-0.09	1
4	14	14	-14	14	28	0	1
	$R_a^{0.5}$	$R_q^{0.5}$	$R_v^{0.5}$	$R_p^{0.5}$	$R_t^{0.5}$	$R_{sk}^{0.5}$	$R_{ku}^{0.5}$
1	0	0	0	0	0	0	0
2	0	0	0	0	0	0	0
3	1.4	2.21	-3.5	3.5	7	0	2.516
4	9.52	10.3	-13,65	10,85	24,5	-0,302	1,364
	$R_a^{7.5}$	$R_q^{7.5}$	$R_v^{7.5}$	$R_p^{7.5}$	$R_t^{7.5}$	$R_{sk}^{7.5}$	$R_{ku}^{7.5}$
1	0	0	0	0	0	0	0
2	0	0	0	0	0	0	0
3	0	0	0	0	0	0	0
4	1.68	1.76	-1.4	2.1	3.5	0.3775	1.051

Для моделі з початковим інтерфейсом 2 параметри шорсткості прямують до 0, що вказує на те, що міжфазна межа після дифузійного відпалу стає плоскою. В моделі 3 одна міжфазна межа за концентрації 7.5 ат. % Sn стає плоскою, шорсткість межі за концентрації 0.5 ат. % Sn зменшується. В моделі 4 шорсткість обох міжфазних меж зменшується.

5. Висновки

Розроблено двовимірну модель дифузійної взаємодії в модельних зразках дифузійної пари Cu-Cu 8ат.% Sn з початковими інтерфейсами різної шорсткості. В основі моделі лежить термодинамічно-кінетичний метод опису дифузійної взаємодії та розроблена кінцево-різницева схема обрахунку зміни концентрації в комірках. Досліджено залежність ширини дифузійної зони після дифузійного відпалу в залежності від форми початкового інтерфейсу в чотирьох модельних зразках. Досліджено вплив дифузійної взаємодії на зміну шорсткості міжфазної межі в досліджених модельних зразках. За аналізу тестових модельних зразків встановлено, що зі збільшенням розмірів виступів, а саме максимальної висоти піків та глибини впадин міжфазної межі, збільшується ширина результуючої дифузійної зони. Дифузійний відпал згладжує міжфазні межі та зменшує їх шорсткість, на що вказує зменшення середнього арифметичного відхилення від середньої лінії, середнього квадратичного відхилення від середньої лінії та максимальної висоти піків та розмірів впадин (моделі 2-4). За низької шорсткості початкового інтерфейсу (модель 2), після дифузійного відпалу міжфазні межі стають плоскими. В моделі 3 міжфазна межа в випадку 7.5 ат. % Sn стає плоскою, шорсткість межі за 0.5 ат. % Sn зменшується. В моделі 4 шорсткість обох міжфазних меж зменшується після дифузійного відпалу.

В майбутньому планується розробка двовимірної моделі дифузійної взаємодії в парі Cu-Sn за присутності в дифузійній зоні проміжних фаз системи Cu-Sn та наявності початкових інтерфейсів різної шорсткості та структури.

Список використаної літератури:

1. Tu K. N. *Electronic thin-film reliability* / K. N. Tu // Cambridge University Press, 2010. – p. 412. – DOI:10.1017/CBO9780511777691
2. Tu K. N. *Solder joint technology* / K. N. Tu // New York: Springer, 2007. – p. 370. – DOI:10.1007/978-0-387-38892-2
3. Морозович В. В. Вплив попереднього оброблення міді на фазо- та пороутворення у твердофазних реакціях міді з цинком / В. В. Морозович, А. Р. Гонда, Ю. О. Ляшенко, Я. Д. Король, О. Ю. Ляшенко, Ч. Чергаті, А. М. Гусак // *Металофізика та новітні технології*. – 2018. – Т. 40, №12. – С. 1649-1673. – DOI:10.15407/mfint.40.12.1649
4. Ніколенко Ю. В. Розробка та застосування апаратно-програмного комплексу у правлінні процесом електролітичного осадження міді в режимі стохастичних коливань / Ю. В. Ніколенко, В. А. Дідук, Я. Д. Король, Ю. О. Ляшенко // *Вісник Черкаського університету. Серія «Фізико-математичні науки»*. – 2016. – №1. – С. 27-29. – Режим доступу: <http://phys-ejournal.cdu.edu.ua/article/view/1372/1396>
5. Тютенко В. М. Вплив SMAT обробки на структуру електроосаджених в стаціонарному, реверсному та стохастичному режимах прошарків міді / В. М. Тютенко, В. В. Морозович, В. А. Дідук, С. О. Колінько, Ю. О. Ляшенко // *Вісник Черкаського університету. Серія «Фізико-математичні науки»*. – 2017. – №1. – С. 63-78. – Режим доступу: <http://phys-ejournal.cdu.edu.ua/article/view/2334/2406>
6. Ляшенко Ю. А. Компьютерное моделирование образования и роста двухфазных зон при изотермической диффузии в тройных системах / Ю. А. Ляшенко, Т. П. Муковоз // *Металлофизика и новейшие технологии*. – 1994. – 16. – с. 23-27.
7. Lyashenko Yu O. Model of growth of an intermediate phase in a thin-film Cu-Sn system / Yu. O. Lyashenko // *Metallofizika I Novejshie Tekhnologii*, – 2003. – Vol. 25, № 2. – P. 159-170. – Режим доступу: <https://mfint.imp.kiev.ua/article/v40/i12/MFiNT.40.1649.pdf>
8. Dinsdale A. T. SGTE data for pure elements / A. T. Dinsdale // *CALPHAD*. – 1991. – Vol. 15, No. 4, – pp. 317-425.
Режим доступу: <http://resource.npl.co.uk/mtdata/SGTEelementdata.pdf>

9. Shim J.-H. Thermodynamic assessment of the Cu-Sn system / J.-H. Shim, Ch.-S. Oh, B.-J. Lee, D. N. Lee // *Z. Metallkd.* – 1996. – 87, 3. – pp. 205-212. – Режим доступу: https://www.researchgate.net/publication/279898348_Thermodynamic_assessment_of_the_Cu-Sn_system
10. Li D. The Cu-Sn phase diagram part II: New thermodynamic assessment / D. Li, P. Franke, S. Fürtauer, D. Cupid, H. Flandorfer // *Intermetallics.* – 2013. – 34. – pp. 148-158. – DOI:10.1016/j.intermet.2012.10.010
11. Fürtauer S. The Cu-Sn phase diagram part I: New experimental results / S. Fürtauer, D. Li, D. Cupid, H. Flandorfer // *Intermetallics.* – 2013. – 34. – pp. 142-147. – Режим доступу: https://www.researchgate.net/publication/257426435_The_Cu-Sn_phase_diagram_Part_I_New_experimental_results
12. Santra S. Vacancy wind effect on interdiffusion in a dilute Cu(Sn) solid solution / S. Santra, A. Paul // *Philosophical Magazine Letters.* – 2012. – Vol. 92, No. 8. – pp. 373-383. – DOI: 10.1080/09500839.2012.682169
13. Hoshimo K. Interdiffusion and Kirkendall effect in Cu-Sn alloys / K. Hoshimo, Y. Iijima, K. Hirano // *Materials Transactions, JIM.* – 1980. – Vol. 21, No. 10. – pp. 674-682. – DOI: 10.2320/matertrans1960.21.674

References:

1. Tu K. N. (2010). *Electronic thin-film reliability.* Cambridge University Press. – DOI:10.1017/CBO9780511777691
2. Tu K. N. (2007). *Solder joint technology.* New York: Springer. – DOI:10,1007 / 978-0-387-38892-2
3. Morozovych V. V., Honda A. R., Lyashenko Yu. O., Korol Ya. D., Liashenko O. Yu., Cserháti C., Gusak A. M. (2018). Influence of copper pretreatment on the phase and pore formations in the solid phase reactions of copper with tin. *Metallophysics and Advanced Technologies (Metallofizika i Noveishie Tekhnologii)*, 40(12), 1649-1673. – DOI:10.15407/mfint.40.12.1649
4. Nikolenko Yu. V., Diduk V. A., Korol Ya. K., Lyashenko Y. O. (2016). Development and application of the hardware and software complex in the board by the process of electrolytic deposition of copper in the mode of stochastic oscillations. *Visnyk Cherkaskoho Universytetu. Seriya «Fizyko-Matematychni Nauky» (Bulletin of Cherkasy University. Series "Physics and Mathematics")*, 1, 27-29. – Retrieved from <http://phys-ejournal.cdu.edu.ua/article/view/1372/1396>
5. Tiutenko V. M., Morozovych V. V., Diduk V. A., Kolinko S., Lyashenko Y. O. (2017). The influence of SMAT processing on microstructure of copper films electroplated in steady-state, reversed impulse and stochastic regimes. *Visnyk Cherkaskoho Universytetu. Seriya «Fizyko-Matematychni Nauky» (Cherkasy University Bulletin: Physical and Mathematical Sciences)*, 1, 63-78. – Retrieved from <http://phys-ejournal.cdu.edu.ua/article/view/2334/2406>.
6. Lyashenko Yu O., Mukovoz T. P. (1994). Computer simulation of the formation and growth of two-phase zones with isothermal diffusion in triple systems. *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, 16, 23-27. (in Russ.). – DOI:10.15407/mfint.40.12.1649
7. Lyashenko Yu O. (2003). Model of growth of an intermediate phase in a thin-film Cu-Sn system. *Metallophysics and Advanced Technologies (Metallofizika i Noveishie Tekhnologii)*, 25(2), 159-170. – Retrieved from <https://mfint.imp.kiev.ua/article/v40/i12/MFiNT.40.1649.pdf>
8. Dinsdale A. T. (1991). SGTE data for pure elements. *CALPHAD*, 15(4), 317-425. – Retrieved from <http://resource.npl.co.uk/mtdata/SGTEelementdata.pdf>
9. Shim J.-H., Oh Ch.-S., Lee B.-J., Lee D. N. (1996). Thermodynamic assessment of the Cu-Sn system. *Z. Metallkd*, 87(3), 205-212. – Retrieved from https://www.researchgate.net/publication/279898348_Thermodynamic_assessment_of_the_Cu-Sn_system

10. Li D, Franke P., Fürtauer S., Cupid D., Flandorfer H. (2013). The Cu-Sn phase diagram part II: New thermodynamic assessment. *Intermetallics*, 34, 148-158. – DOI:10.1016/j.intermet.2012.10.010
11. Fürtauer S, Cupid D., Flandorfer H. (2013). The Cu-Sn phase diagram, Part I: New experimental results. *Intermetallics*, 34, 142-147. – Retrieved from: https://www.researchgate.net/publication/257426435_The_Cu-Sn_phase_diagram_Part_I_New_experimental_results
12. Santra S, Paul A. (2012). Vacancy wind effect on interdiffusion in a dilute Cu(Sn) solid solution. *Philosophical Magazine Letters*, 92(8), 373-383. – DOI: 10.1080/09500839.2012.682169
13. Hoshimo K., Iijima Y., Hirano K. (1980). Interdiffusion and Kirkendall effect in Cu-Sn alloys *Materials Transactions JIM*, 21(10), 674-682. – DOI: 10.2320/matertrans1960.21.674

Додаток 1. Енергії Гіббса чистих компонентів Cu, Sn та параметри взаємодії компонентів для твердого розчину α (fcc) [8-11].

Енергія Гіббса Cu в fcc ґратці, в різних інтервалах температур.

$$298.15 \text{ K} < T < 1357.77 \text{ K}$$

$$G_{Cu}^{fcc} = -7770.458 + 130.485403 \times T - 24.112392 \times T \ln(T) - 0.00265684 \times T^2 + 1.29223 \times 10^{-7} \times T^3 + 52478 \times T^{-1} \quad (1)$$

$$1358.01 \text{ K} < T < 3200 \text{ K}$$

$$G_{Cu}^{fcc} = -13542.026 + 183.803828 \times T - 31.38 \times T \ln(T) + 3.642 \times 10^{29} \times T^{-9} \quad (2)$$

Енергія Гіббса Sn в fcc ґратці, в різних інтервалах температур.

$$298.15 \text{ K} < T < 505.078 \text{ K}$$

$$G_{Sn}^{fcc} = -1705.135 + 60.243315 \times T - 15.961 \times T \ln(T) - 18.8702 \times 10^{-3} \times T^2 + 3.121167 \times 10^{-6} \times T^3 - 61960 \times T^{-1} \quad (3)$$

$$505.078 \text{ K} < T < 800 \text{ K}$$

$$G_{Sn}^{fcc} = 6674.724 - 1.194731 \times T - 8.2590486 \times T \ln(T) - 16.814429 \times 10^{-3} \times T^2 + 2.623131 \times 10^{-6} \times T^3 - 1081244 \times T^{-1} - 1.2307 \times 10^{25} \times T^{-9} \quad (4)$$

$$800 \text{ K} < T < 3000 \text{ K}$$

$$G_{Sn}^{fcc} = -4106.959 + 133.79688 \times T - 28.4512 \times T \ln(T) - 1.2307 \times 10^{25} \times T^{-9} \quad (5)$$

Параметри взаємодії компонентів в розчині: для твердого розчину α (fcc) олова в міді

$${}^0L_{CuSn}^{liq} = -10672.0 - 1.4837 \times T \quad (6)$$

$${}^1L_{CuSn}^{liq} = -15331.3 + 6.9539 \times T \quad (7)$$

S. I. Derevianko

PhD student of the Department Physics, Educational-Scientific Institute of Informational and Educational Technologies, The Bohdan Khmelnytsky National University of Cherkasy, Cherkasy, Ukraine, derevianko.serhii@gmail.com

Yu. O. Lyashenko

doctor of physical and mathematical sciences, professor, Educational-Scientific Institute of Informational and Educational Technologies The Bohdan Khmelnytsky National University of Cherkasy, Cherkasy, Ukraine, urico@ukr.net

**MESOSCOPIC MODEL OF DIFFUSION INTERACTION AND PHASE GROWTH IN
Cu-Sn SYSTEM**

Summary. *The model of interdiffusion in system Cu - Cu 8 at.% Sn depending on the form of interface was made in this work. The model sample is a diffusion pair of Cu and Cu 8 at.% Sn, which was thermally annealed at the temperature of 741°C. In this simulation was used the kinetic-thermodynamic approach, which included the calculation of diffusion flux, chemical potentials and Onzager coefficients for the Cu-Sn system phases Calculation of Gibbs potentials for pure components and a solid solution of the Cu-Sn system was carried out using CALPHAD technology. Simulation of diffusion evolution in the sample allows us to calculate the concentration profiles, the positions of the interphase boundaries, the width of the diffusion zone, to estimate the change in the roughness of the interphase boundary during the diffusion reaction. The following roughness parameters are calculated: arithmetical mean deviation of the assessed profile, root mean squared, maximum valley depth, maximum peak height, maximum height of the profile, the skewness and kurtosis.*

We investigated influence diffusion interaction on the change of roughness of the interphase boundary in model samples. As the size of the projections increases, namely maximum valley depth and maximum peak height, the thickness of the resulting diffusion zone increases.

The diffusion annealing smooth out the interphase limits and reduces their roughness (sample 2-4).

In the future we plan to develop a two-dimensional model of diffusion interaction in the Cu-Sn pair in the presence of intermediate phase Cu-Sn in diffusion zone and the presence of initial interfaces with different roughness and structure.

Keywords: diffusion, Gibbs potential, interphase boundary, diffusion flux, chemical potential.

Одержано редакцією 12.05.2018

Прийнято до друку 19.12.2018