

ORCID: 0000-0001-8267-8365

Д. І. Коломієць

Аспірант кафедри фізики, ННІ ІНФОТЕХ,
Черкаський національний університет імені Богдана Хмельницького, Черкаси, Україна,
denyskolomiets95@gmail.com

ORCID: 0000-0001-5885-2079

Є. В. Татарчук

Кандидат фіз.-мат. наук, доцент фізики,
Черкаський національний університет імені Богдана Хмельницького, Черкаси, Україна,
etatar@ukr.ne

DOI: 10.31651/2076-5851-2021-70-76

PACS: 66.30.-h, 68.35.Fx, 81.05.Bx,
64.70.kd, 66.30.Ny

ВПЛИВ ЗОВНІШНЬОГО ТИСКУ НА КІНЕТИКУ РОСТУ ФАЗИ У СИСТЕМІ CU-SN-CU

Експериментально досліджено кінетику росту фаз у системі Cu-Sn-Cu при ізотермічному відпалі (250°C), при атмосферному тиску і з примусовим зовнішнім тиском. Обраховано товщину фаз Cu₃Sn + Cu₆Sn₅ через певні проміжки часу відпалу системи із примусовим зовнішнім тиском і без нього. На основі отриманих даних представлено графіки залежності товщини фаз від часу відпалу. Показано, що зовнішній тиск значно сповільнює ріст фаз у даній системі.

Ключові слова: реакційна дифузія, бінарна система, рідкофазні реакції міді і олова, кінетика росту.

1. Вступ

Незважаючи на стрімкий розвиток та мініатюризацію елементної бази сучасної електроніки, реалізація електричних з'єднань компонентів відбувається за рахунок використання давно відомого методу паяних з'єднань, основними компонентами яких залишаються мідь та олово. При створенні паяного з'єднання відбувається реакційна дифузія між міддю та рідким оловом у результаті чого на їх контакті утворюються дві фази Cu₆Sn₅ та Cu₃Sn. У процесі росту фази Cu₃Sn в ній формуються пори, які можуть впливати на механічні та електричні властивості контакту і слугувати місцями зародження дефектів, що спричиняють вихід з ладу саме електричних з'єднань елементів схеми. Тому дослідженням реакційної дифузії у системі Cu-Sn та проблемі утворення пор присвячено багато публікацій експериментального та теоретичного характеру [1-5].

На процес росту фази Cu₃Sn та утворення в ній пор впливає багато факторів, наприклад розмір зерен підложки міді [6], методика обробка підложки [5]. В даній роботі проведено експериментальне дослідження впливу зовнішнього тиску на пригнічення росту фаз Cu₃Sn+Cu₆Sn₅ в системі Cu-Sn-Cu.

2. Методика експериментальних досліджень

Для експериментального дослідження кінетики росту фази у системі Cu-Sn-Cu було виготовлено дві мідні пластинки однакових розмірів з ретельно підготовленими поверхнями, які були піддані механічній та хімічній обробці. Між пластинок міді був

нанесений прошарок олова. Для забезпечення фіксованої товщини шару Sn у зразках, були встановлені обмежувачі з двох сторін пластинок.

Ці обмежувачі гарантували однакову товщину Sn (15μ) у зразках. Після розпилювання матеріалу, отримані два однакових зразки, з якими проводили подальші дослідження (рис.1). Торці обох зразків також були піддані механічній та хімічній обробці, щоб забезпечити однакові умови для проведення експерименту.

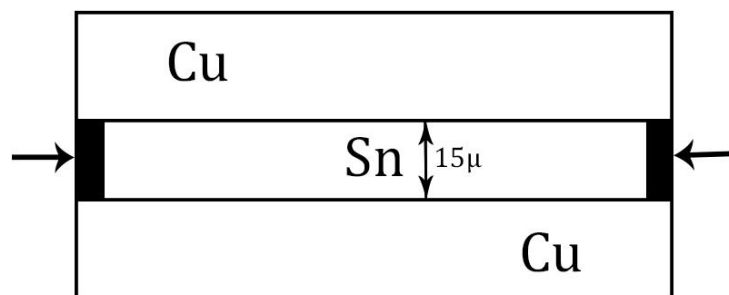


Рис. 1. Виготовлена система Cu-Sn-Cu
Fig. 1. The Cu-Sn-Cu system was produced.

В експерименті було використано два зразки: один з них знаходився при атмосферному тиску, а другий був стиснутий з усіх боків. Для забезпечення рівномірного тиску на систему з усіх боків, зразок був стиснутий металевими стержнями та пластинами (рис.2) з допомогою гідравлічного пресу (тиск $150\text{кгс}/\text{см}^2$). Постійний тиск фіксувався спеціально виготовленими затискачами. Дана процедура була застосована з метою вивчення впливу зовнішнього тиску на кінетику росту фази у системі Cu-Sn-Cu.

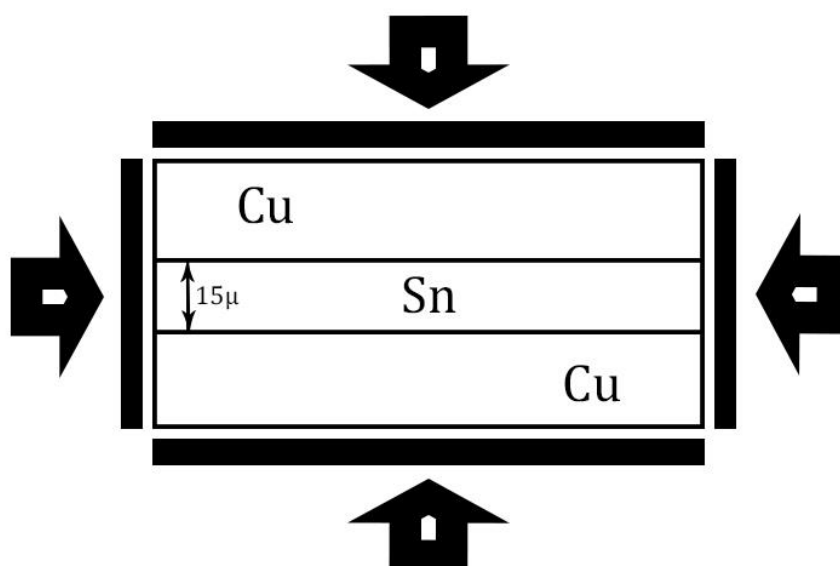


Рис. 2. Зразок Cu-Sn-Cu у вигляді сандвіча, затиснений у струбці.
Fig. 2. A sample of Cu-Sn-Cu in the form of a sandwich, clamped in a clamp.

Після підготовки експериментальних зразків, проведення механічної та хімічної обробки, було розпочато відпал зразків для вивчення кінетики росту фази у системі Cu-Sn-Cu.

Дані експериментально досліджувані зразки певний час піддавалися одночасному ізотермічному відпалу при температурі 250°C. Через певні інтервали часу (2 години) обидва зразки діставали з печі та проводили знімки торцевої поверхні. Загальний час відпалу становив 12 годин. Для прикладу знімки (з однаковим збільшенням) зразків після ізотермічного відпалу протягом 6 годин під тиском і без нього що зображено на (рис.3-4).

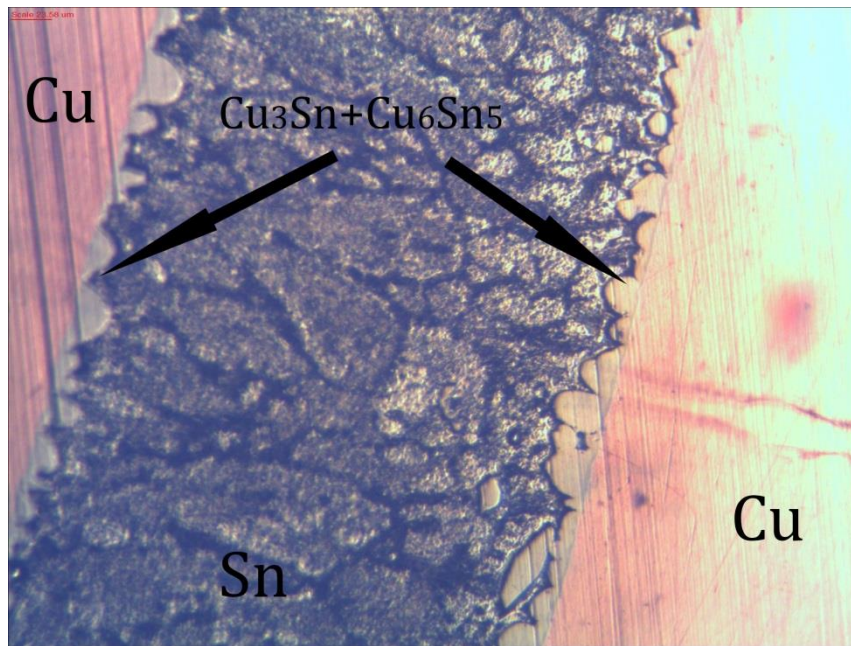


Рис. 3. Зразок після 6 годин відпалу без впливу зовнішнього тиску.

Fig. 3. The sample after 6 hours of annealing without the influence of external pressure.

Проведено цикл експериментів для встановлення впливу температури на процес утворення нанопоясів та побудовані відповідні залежності водневих показників та в'язкості досліджуваних суспензій. На рис. 4-10 представлені результати впливу температури та інтенсивності перемішування на водневий показник та в'язкість суспензії у процесі синтезу.

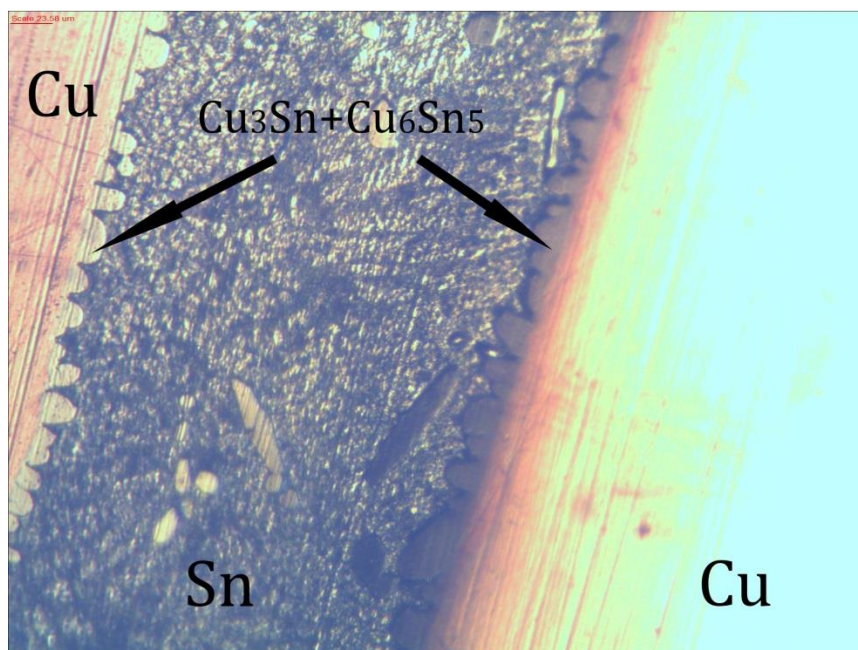


Рис. 4. Зразок після 6 годин відпалу під впливом зовнішнього тиску
Fig. 4. Sample after 6 hours of annealing under external pressure

Через кожні 2 години вимірювалась загальна товщина фаз $\text{Cu}_3\text{Sn} + \text{Cu}_6\text{Sn}_5$. Для вимірювання товщини фаз був застосований металографічний мікроскоп ПМ, а обробку знімків та вимірювання товщини вище вказаних фаз здійснювали з використанням програми Photoshop.

Навіть без вимірювання товщини фаз, візуально (рис.3-4) видно, що в зразках які знаходились під зовнішнім додатковим тиском ($150\text{кгс}/\text{см}^2$) товщина фаз менша ніж у зразках під атмосферним тиском. Після завершення кожного відпалу, проводилась ретельна обробка зразків [7] та обрахунок товщини фаз.

Для візуалізації залежності росту фази від умов відпалу із отриманих експериментальних даних було побудовано графік.

На графіку (зразок 1) представлений досліджуваний зразок, який відпалювався без зовнішнього тиску, тоді як на графіку (зразок 2) представлений досліджуваний зразок, який відпалювався при стисненні з усіх сторін (рис. 5). Графік демонструє, як змінюється ріст фази в залежності від умов відпалу.

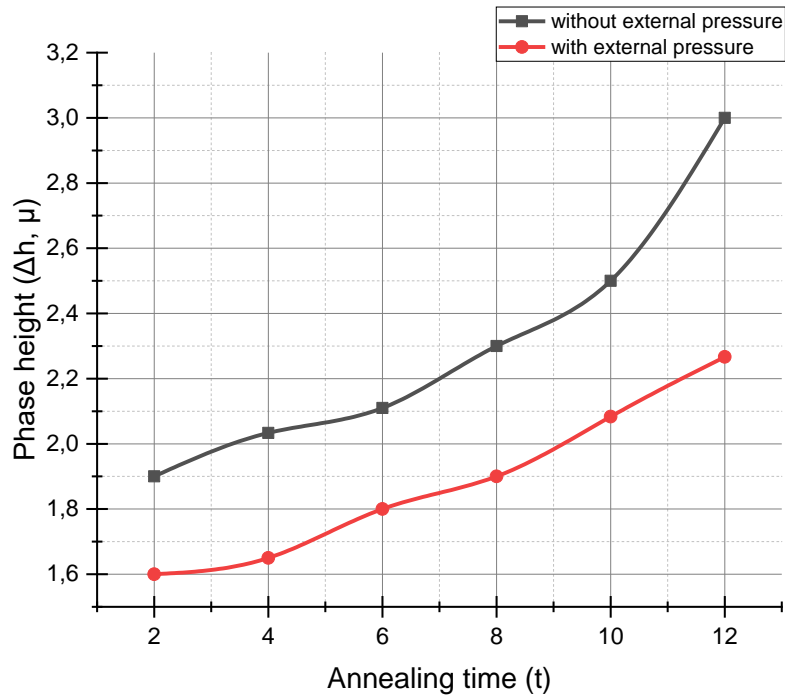


Рис. 5. Графік залежностей росту фаз від часу відпалу

Fig. 5. Graph of phase growth dependences on annealing time.

Лінія на графіку що відповідає відпалу системі під зовнішнім тиском знаходиться нижче ніж лінія, що відповідає відпалу при атмосферному тиску. Отже це говорить про те, що товщина фаз $\text{Cu}_3\text{Sn} + \text{Cu}_6\text{Sn}_5$ у зразку з додатковим зовнішнім тиском менші ніж без тиску. Також з графіка видно, що в цілому товщина фаз при атмосферному відпалі росте дещо швидше. Оскільки фази при відпалі із зовнішнім тиском менші за розміром, і ростуть повільніше при аналогічних умовах, то логічно передбачити що і пор, які в них утворюються в цілому буде менше. Таким чином, дана методика може розглядатись як один із способів пригнічення утворення пор у системі мідь-олово.

3. Висновки

1. При дослідженні кінетики реакційної дифузії в системі Cu-Sn-Cu при ізотермічному відпалі (250 °C) розглядався один із варіантів сповільнення росту фаз і відповідно пор, як негативного явища.

2. Експериментально, з допомогою порівняльного аналізу, встановлено, що зовнішній тиск значно сповільнює ріст фаз у системі Cu-Sn-Cu (результати досліджень приведені на графіках).

3. Отримані результати говорять про те, що даний метод (додатковий зовнішній тиск) можна розглядати як один із способів пригнічення утворення пор у системі мідь-олово.

Список використаної літератури:

1. S.J. Wangl and C.Y. Liu. Study of Interaction between Cu-Sn and Ni-Sn Interfacial Reactions by $\text{Ni-Sn}_{3.5}\text{Ag-Cu}$ Sandwich Structure/ S.J. Wangl and C.Y. Liu. // Journal of electronic materials. –2003. –V. 32.– P. 1303–1309. – Режим доступу: <https://doi.org/10.1007/s11664-003-0027-0>
2. V.A. Baheti. Bifurcation of the Kirkendall marker plane and the role of Ni and other impurities on the growth of Kirkendall voids in the Cu-Sn system/ V.A. Baheti,

- S.Kashyap, P. Kumar, K. Chattopadhyay, A. Paul. // *Acta Materialia*. –2017. –V. 131.– P. 260-270. – Режим доступу: <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2017.03.068>
3. V.V. Turlo. Model of phase separation and of morphology evolution in two-phase alloy / V.V. Turlo , A.M. Gusak, K.N. Tu // *Philosophical Magazine*. –2012. –V. 93 .– P. 1–13. – Режим доступу: <https://doi.org/10.1080/14786435.2012.747011>
 4. Y. Chun. Effect of deposit thickness during electroplating on Kirkendall voiding at Sn/Cu joints / Chun Yu , Yang Yang, Jieshi Chen , Jijin Xu , Junmei Chen, Hao Lu // *Materials Letters*. –2014. –V. 128 .– P. 9–11. – Режим доступу: <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2014.04.091>
 5. V.V. Morozovych. Influence of copper pretreatment on the phase and pore formations in the solid phase reactions of copper with tin / Morozovych, V. V., Honda, A. R., Lyashenko, Y. O., Korol, Y. D., Liashenko, O. Y., Cserhati, C.,Gusak, A. M. // *Металлофізика и новейшие технологии*. –2018. –V. 40 .– P. 1649-1673. – Режим доступу: <https://doi.org/10.15407/mfint.40.12.1649>
 6. Є. В. Татарчук. Вплив розміру зерен міді на швидкість росту прошарку проміжних фаз у дифузійній парі Cu-Sn / Є. В. Татарчук І. Г. Галат // *Вісник Черкаського університету. Серія «Фізико-математичні науки»* . –2015. –V. 16 .– P. 64-71. – Режим доступу: <https://phys-ejournal.cdu.edu.ua/article/view/681>
 7. Лахтін Ю. М. Основи металознавства./ Ю. М. Лахтін // *Металургія»* . –1988.– P. 1-320. – Режим доступу: <https://booktechosnovy-metallovedeniya-1988-yu-m-lahtin.html>

References:

1. S.J. Wangl and C.Y. Liu. (2003) Study of Interaction between Cu-Sn and Ni-Sn Interfacial Reactions by Ni-Sn3.5Ag-Cu Sandwich Structure. *Journal of Electronic materials*, 32, 1303–1309. – Retrieved from: <https://doi.org/10.1007/s11664-003-0027-0>
2. Varun A Baheti, Sanjay Kashyap, Praveen Kumar, Kamanio Chattopadhyay and Alope Paul. (2017). Bifurcation of the Kirkendall marker plane and the role of Ni and other impurities on the growth of Kirkendall voids in the Cu–Sn system. *Acta Materialia* ,131, 260-270. – Retrieved from: <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2017.03.068>
3. V.V. Turlo , A.M. Gusak & K.N. Tu. (2012). Model of phase separation and of morphology evolution in two-phase alloy. *Philosophical Magazine*, 93,1–13. – Retrieved from: <https://doi.org/10.1080/14786435.2012.747011>
4. Chun Yu , Yang Yang, Jieshi Chen , Jijin Xu , Junmei Chen, Hao Lu. (2014). Effect of deposit thickness during electroplating on Kirkendall voiding at Sn/Cu joints. *Materials Letters*, 128, 9–11. – Retrieved from: <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2014.04.091>
5. Morozovych, V. V., Honda, A. R., Lyashenko, Y. O., Korol, Y. D., Liashenko, O. Y., Cserhati, C., & Gusak, A. M. (2018). Influence of copper pretreatment on the phase and pore formations in the solid phase reactions of copper with tin. *Metal Physics and Latest Technologies*, 40, 1649-1673. – Retrieved from: <https://doi.org/10.15407/mfint.40.12.1649>
6. Tatarchuk E. V. (2015) Influence of the size of copper grains on the growth rate of a layer of intermediate phases in a Cu-Sn diffusion pair. *Bulletin of the Cherkasy University. Series "Physical and mathematical sciences"*, 16, 64-71. – Retrieved from: <https://phys-ejournal.cdu.edu.ua/article/view/681>

7. Lakhtin Y.M. (1988) Fundamentals of metal science. *Metallurgy*.1-320. – Retrieved from: <https://booktechosnovy-metallovedeniya-1988-yu-m-lahtin.html>.

D. I. Kolomiets

PhD student of the Department of Physics, The Bohdan Khmelnytsky National University of Cherkasy, Cherkasy, Ukraine,
denyskolomiets95@gmail.com

E. V. Tatarchuk

Candidate of physical and mathematical sciences, associate professor, The Bohdan Khmelnytsky National University of Cherkasy, Cherkasy, Ukraine,
etatar@ukr.net

THE INFLUENCE OF EXTERNAL PRESSURE ON THE KINETICS OF PHASE GROWTH IN THE CU-SN-CU SYSTEM

In the conducted study, the kinetics of phase growth in the Cu-Sn-Cu system under conditions of isothermal annealing at a temperature (250°C) were investigated. In addition, the effect of external pressure on the process of growth or inhibition of the phase and the formation of pores was studied. The main goal of the study was to determine the influence of external pressure on the thickness of the Cu₃Sn and Cu₆Sn₅ phase during certain periods of annealing time of the system.

After the experiment, the obtained data were processed and analyzed. The thickness of the Cu₃Sn and Cu₆Sn₅ phases was processed for two test samples: with and without the influence of external pressure. For this purpose, the values of the phase thickness at different stages of system annealing were measured. After the calculation, graphs were drawn that show the dependence of the phase thickness on the annealing time for both systems.

The results of the experiment showed that the external pressure significantly slows down the growth of the Cu₃Sn and Cu₆Sn₅ phases in the studied system. Graphs of changes in phase thickness from annealing time showed a noticeable difference between the studied samples.

This research has an important practical application in the field of materials science and metallurgy. Because during the creation of a soldered joint, reactive diffusion occurs between copper and liquid tin, as a result of which two phases are formed at their contact. In the process of its growth, in turn, pores are formed, which can affect the mechanical and electrical properties of the contact and serve as places for the nucleation of defects, which cause the electrical connections of the circuit elements to fail. That is why the findings can help to improve the technology of making soldered joints, ensuring better quality and their mechanical properties.

Key words: reactive diffusion, binary system, copper/tin state liquid reactions, growth kinetics.

*Одержано редакцією 08.09.2022
Прийнято до друку 12.10.2022*