

ORCID: 0000-0001-8246-2679

С. В. Корнієнко

кандидат фіз.-мат. наук, доцент, ННІ ІНФОТЕХ
Черкаський національний університет
імені Богдана Хмельницького, Черкаси, Україна,
semen@phys.cdu.edu.ua

УДК 538.9

PACS 05.70.Np, 61.72.Bb, 61.72.jd,
66.30.Dn, 66.30.Ny

DOI: 10.31651/2076-5851-2021-74-89

**МОДЕЛЮВАННЯ ПОРОУТВОРЕННЯ ПРИ РЕАКЦІЙНІЙ ДИФУЗІЇ У
БІНАРНІЙ СИСТЕМІ**

В роботі запропонована удосконалена модель пороутворення в бінарній системі під час реакційної дифузії. Пори виникають з певною періодичністю біля міжфазної границі, де існує пересичення по вакансіям внаслідок різних рухливостей компонентів. В об'ємі нової фази вони рухаються разом з кристалічною ґраткою, змінюючись за розміром. Модель враховує вплив на пороутворення дії джерел/стоків нерівноважних вакансій розташованих, як в об'ємі фази, так і на її міжфазних границях. Результати моделювання показують, що розподіл пор за розмірами вздовж дифузійної зони, та їх максимальний розмір суттєво залежать від того, на скільки ефективно працюють джерела/стоки вакансій різних видів.

Ключові слова: пора, розподіл пор за розмірами, нерівноважні вакансії, реакційна дифузія, бінарна система.

Вступ

Утворення пор, яке нерідко відбувається під час взаємної та реакційної дифузії, негативно впливає на механічні та електротехнічні властивості матеріалів. Уже тривалий час ця проблема залишається актуальною для люттевих з'єднань у мікроелектроніці [1-5]. В процесі дифузії, що відбувається за вакансійним механізмом, при суттєвій різниці між власними коефіцієнтами дифузії атомів, у дифузійній зоні виникають області де концентрація вакансій відмінна від рівноважної (з пересичення і недосиченням вакансіями). Система буде поступово переходити до стану з рівноважною концентрацією вакансій, шляхом народження/зникнення надлишкових вакансій. Цей процес відбувається на джерелах/стоках вакансій, у ролі яких виступають дислокації, міжфазні та міжзеренні границі, мікропори. Вплив ефективності роботи джерел/стоків вакансій на кінетику росту фази, та на морфологію дифузійної зони проаналізовано в роботах [6-12]. Експериментальні факти про зникнення вже існуючих пор та появу і ріст нових, можуть слугувати підтвердженням дії пор в якості джерел/стоків вакансій. На основі наведених вище міркувань, при побудові моделі пороутворення, вважалось, що нові пори з'являються там, де є пересичення по вакансіям, оскільки вони слугують стоками для нерівноважних вакансій.

Метою роботи є дослідити пороутворення під час реакційної дифузії у бінарній системі за допомогою нової комп'ютерної моделі, яка є подальшим розвитком попередніх досліджень [13,14].

Робота виконана за підтримки Міністерства освіти і науки України, згідно з держбюджетною темою «Сингулярні розв'язки рівнянь математичної фізики в анізотропних і неоднорідних середовищах, моделювання процесів дифузії та абсорбції» (№ державної реєстрації 0119U100421).

1. Дифузійний ріст фази α .

В якості модельної системи розглянемо бінарну дифузійну пару, що складається з чистих взаємно нерозчинних компонентів А і В. При ізотермічному відпалюванні на границі А|В росте проміжна фаза α . Дифузія відбувається за вакансійним механізмом. Джерела/стоки вакансій діють, як на міжфазних границях, так і в об'ємі фази α . Припускаємо, що атоми сорту А мають більший власний коефіцієнт дифузії ніж атоми сорту В ($D_A > D_B$), тому результуючий потік речовини в системі відліку кристалічної ґратки буде направлений вздовж вісі ОХ, а результуючий потік вакансій – в протилежний бік (Рис. 1).

Опис росту фази α , починаємо з моменту, коли вона вже має вигляд суцільного прошарку. Потіки речовини можна розглядати тільки в фазі α , нехтуючи ними в інших частинах дифузійної пари, оскільки вважаємо, що компоненти А і В взаємно нерозчинні.

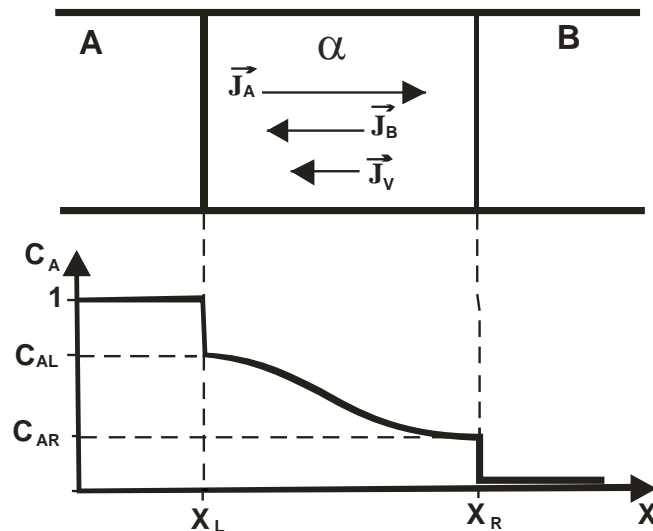


Рис. 1. Концентраційний профіль компоненту А у фазі α .
Fig. 1. The concentration profile of component A in the phase α .

Швидкість росту товщини фази α описує рівняння:

$$\frac{d(\Delta x)}{dt} = \frac{1}{c_A c_B} \Omega J_A; \quad (1)$$

де J_A , – потік компоненту А у фазі α відносно лабораторної системи відліку; Δx – ширина фази α ; Ω – об'єм що припадає на один атом.

Запишемо рівняння для потоку компонента А у фазі α з урахуванням існування нерівноважних вакансій [10]:

$$\Omega J_A = -\tilde{D} \frac{\partial c_A}{\partial x} + \frac{(\tilde{D} - D_{NG}) D_V}{(D_A - D_B)} \frac{\partial c_V}{\partial x} \quad (2)$$

де c_A , c_B , c_V - концентрація компонентів А, В і вакансій (середнє значення) у фазі α , відповідно; D_A , D_B - парціальні коефіцієнти дифузії компонентів А і В у фазі α ; D_V - коефіцієнти дифузії вакансій у фазі α ; $\frac{\partial c_A}{\partial x}$, $\frac{\partial c_B}{\partial x}$, $\frac{\partial c_V}{\partial x}$ - градієнти концентрації елемента А, В і вакансій відповідно; \tilde{D} - коефіцієнт взаємної дифузії по Даркену ($\tilde{D} = c_A D_B + c_B D_A$); D_{NG} - коефіцієнт дифузії Назарова-Гурова ($D_{NG} = \frac{D_A D_B}{(c_A D_A + c_B D_B)}$).

Вважаємо, що D_A , D_B , D_V не залежать від координати.

Запишемо рівняння балансу для вакансій в об'ємі фази α :

$$\frac{\partial c_V}{\partial t} = -\frac{\partial(\Omega j_V)}{\partial x} - \frac{(c_V - c_V^{eq})}{\tau_{Vg}}, \quad (3)$$

де j_V - потік вакансій у фазі α відносно системи відліку кристалічної ґратки; c_V - концентрація вакансій в даній точці середовища; c_V^{eq} - рівноважна концентрація вакансій; Ω - об'єм, що припадає на одну вакансію (атом); τ_{Vg} - час релаксації вакансій у об'ємі фази α .

Вираз для j_V має наступний вигляд [10]:

$$\Omega j_V = (D_A - D_B) \frac{\partial c_A}{\partial x} - D_V \frac{\partial c_V}{\partial x}. \quad (4)$$

Введемо позначення для пересичення по вакансіям:

$$(c_V - c_V^{eq}) = U. \quad (5)$$

З (5) випливають наступні співвідношення: $\frac{\partial c_V}{\partial x} = \frac{\partial U}{\partial x}$, $\frac{\partial^2 c_V}{\partial x^2} = \frac{\partial^2 U}{\partial x^2}$.

Припустимо, що для вакансій виконується умова квазістаціонарності, тобто зміна c_V буде достатньо повільною $\frac{\partial c_V}{\partial t} \approx 0$. Перепишемо рівняння (3), з урахуванням умови квазістаціонарності для вакансій, використовуючи рівняння (4) та позначення (5):

$$(D_A - D_B) \frac{\partial^2 c_A}{\partial x^2} - D_V \frac{\partial^2 U}{\partial x^2} = -\frac{U}{\tau_{Vg}} \quad (6)$$

Будемо вважати, що потік компонента А відносно лабораторної системи відліку є постійним вздовж всієї фази α , тобто $\frac{\partial J_A}{\partial x} = 0$. За цієї умови з рівняння (2) отримаємо наступне співвідношення:

$$-\tilde{D} \frac{\partial^2 c_A}{\partial x^2} + \frac{(\tilde{D} - D_{NG}) D_V}{(D_A - D_B)} \frac{\partial^2 U}{\partial x^2} = 0. \quad (7)$$

З рівнянь (6) і (7) отримуємо рівняння для пересичення по вакансіям U у фазі α :

$$\frac{\partial^2 U}{\partial x^2} = \frac{U}{L_V^2} \quad (8)$$

де L_V - характерна довжина для вакансій у об'ємі фази α ($L_V^2 = (D_{NG} D_V \tau_{Vg}) / \tilde{D}$)

Розв'язок рівняння (8) представимо наступним чином:

$$U = M e^{\frac{x}{L_V}} + N e^{-\frac{x}{L_V}}, \quad (9)$$

де M і N - константи.

Використовуючи розв'язок (9) отримаємо з (5) та (7) вирази для градієнтів концентрації вакансій та компонента А у фазі α :

$$\frac{\partial c_V}{\partial x} = \frac{1}{L_V} \left(M e^{\frac{x}{L_V}} - N e^{-\frac{x}{L_V}} \right). \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_A}{\partial x} = & \frac{\Delta c}{\Delta x} + \frac{D_V (\tilde{D} - D_{NG})}{\tilde{D} (D_A - D_B)} \frac{1}{L_V} \left(M e^{\frac{x}{L_V}} - N e^{-\frac{x}{L_V}} \right) - \\ & - \frac{D_V (\tilde{D} - D_{NG})}{\tilde{D} (D_A - D_B)} \frac{1}{\Delta x} \left(M \left(e^{\frac{\Delta x}{L_V}} - 1 \right) + N \left(e^{-\frac{\Delta x}{L_V}} - 1 \right) \right). \end{aligned} \quad (11)$$

де Δx - ширина фази α ; Δc - концентраційний інтервал гомогенності фази α по компоненту А.

Для знаходження констант M та N запишемо рівняння балансу для вакансій на міжфазних границях (лівій – L, правій - R) у фазі α (за умови квазістаціонарності $\frac{\partial c_V}{\partial t} = 0$):

$$\begin{aligned} L: \quad \frac{\Omega j_V}{\delta} &= -\frac{U}{\tau_{VL}}; \\ R: \quad \frac{\Omega j_V}{\delta} &= \frac{U}{\tau_{VR}}. \end{aligned} \quad (12)$$

де τ_{VL} , τ_{VR} – час релаксації вакансій у фазі α на лівій та правій міжфазних границях, відповідно; δ – ширина границі (область фази α , для якої записуються рівняння (12)).

Підставимо у рівняння (12) вираз для потоку вакансій (4) з урахуванням (10), (11):

$$\begin{aligned} L: \quad (D_A - D_B) \frac{\partial c_A(x_L)}{\partial x} - \frac{D_V}{L_V} \left(M e^{\frac{x_L}{L_V}} - N e^{-\frac{x_L}{L_V}} \right) &= -\frac{\delta}{\tau_{VL}} \left(M e^{\frac{x_L}{L_V}} + N e^{-\frac{x_L}{L_V}} \right); \\ R: \quad (D_A - D_B) \frac{\partial c_A(x_R)}{\partial x} - \frac{D_V}{L_V} \left(M e^{\frac{x_R}{L_V}} - N e^{-\frac{x_R}{L_V}} \right) &= \frac{\delta}{\tau_{VR}} \left(M e^{\frac{x_R}{L_V}} + N e^{-\frac{x_R}{L_V}} \right). \end{aligned} \quad (13)$$

Визначимо константи M і N , розв'язуючи систему рівняння (13) та (11).

$$\begin{aligned} M &= \frac{P \frac{(D_A - D_B) \Delta c}{D_V}}{\left(1 - \frac{D_{NG}}{\tilde{D}}\right) \left[P \left(e^{\frac{\Delta x}{L_V}} - 1 \right) + \left(e^{-\frac{\Delta x}{L_V}} - 1 \right) \right] + \frac{D_{NG}}{\tilde{D}} \frac{\Delta x}{L_V} (P-1) - \frac{\delta \Delta x}{L_L^2} (P+1)}; \\ N &= \frac{\frac{(D_A - D_B) \Delta c}{D_V}}{\left(1 - \frac{D_{NG}}{\tilde{D}}\right) \left[P \left(e^{\frac{\Delta x}{L_V}} - 1 \right) + \left(e^{-\frac{\Delta x}{L_V}} - 1 \right) \right] + \frac{D_{NG}}{\tilde{D}} \frac{\Delta x}{L_V} (P-1) - \frac{\delta \Delta x}{L_L^2} (P+1)}. \end{aligned} \quad (14)$$

$$\text{де } P = \frac{\frac{D_{NG}}{\tilde{D}} \left(1 - e^{-\frac{\Delta x}{L_V}}\right) + \delta \left(\frac{L_V}{L_R^2} e^{-\frac{\Delta x}{L_V}} + \frac{L_V}{L_L^2} \right)}{\frac{D_{NG}}{\tilde{D}} \left(1 - e^{\frac{\Delta x}{L_V}}\right) - \delta \left(\frac{L_V}{L_R^2} e^{\frac{\Delta x}{L_V}} + \frac{L_V}{L_L^2} \right)};$$

L_L - характерна довжина для вакансій на лівій границі фази α ($L_L^2 = D_V \tau_{VL}$);

L_R - характерна довжина для вакансій на правій границі фази α ($L_R^2 = D_V \tau_{VR}$).

Отримані вирази для констант M та N дають можливість розраховувати не лише ширину фази α , але і потік вакансій, та пересичення по вакансіям у різних точках дифузійної зони в середині цієї фази - величин необхідних для моделювання процесу пороутворення.

2. Модель пороутворення.

Пороутворення відбувається під час реакційної дифузії в бінарній системі. Математична модель, що описує ріст нової фази α в процесі реакційної дифузії розглянута вище. Вважається, що пори виникають в тій частині дифузійної зони, де

існує пересичення по вакансіям. Вони слугують додатковими стоками нерівноважних вакансій (F-стоки). В розглядуваній модельній системі результуючий потік вакансій направлений у бік більш рухливого компоненту А, тому у фазі α на міжфазній границі $A|\alpha$ виникає область, де існує додатне пересичення по вакансіям. При моделюванні процесу пороутворення в цю область фази α вводимо з певною періодичністю нові пори, слідкуючи за подальшою зміною їх розміру і положення у дифузійній зоні.

Основні наближення моделі пороутворення:

1. Пори мають сферичну форму.
2. Пори не взаємодіють між собою.
3. Наявність пор не змінює дифузійного потоку компонентів у дифузійній зоні.
4. Перша пора у системі з'являється, коли ширина фази α досягне певного значення Δx_K . Розрахунок зміни ширини фази α з часом проводиться за рівняннями (1), (2), (10), (11), (14).
5. Після появи, пора має початковий радіус R_0 і початкову координату x_0 . Координата пори у дифузійній зоні визначається відносно лівої гранці фази α (Рис.2).

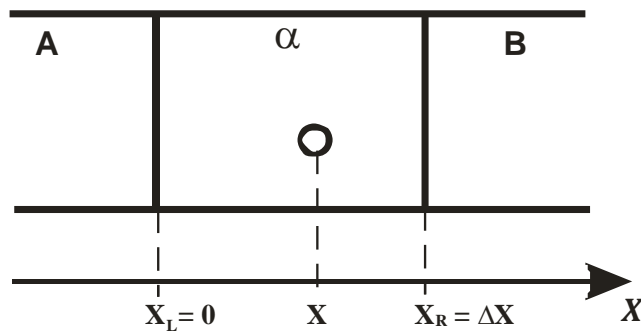


Рис. 2. Розташування пори у фазі α .
Fig. 2. The void location in the phase α .

6. Пора рухається всередині фази разом з кристалічною ґраткою в її околі. Швидкість її руху в лабораторній системі відліку буде рівна швидкості течії кристалічної ґратки – швидкості Кіркендала:

$$V_K = \Omega \cdot j_V,$$

де V_K – швидкість Кіркендала; j_V – потік вакансій в фазі α , Ω – об'єм, що припадає на один атом. Потік вакансій j_V розраховується за рівнянням (4).

7. Швидкість зміни розміру пори розраховується за наступним співвідношенням [11]:

$$\frac{dR}{dt} = D_V \frac{(c_V - c_V^{eq})}{R},$$

де R – радіус пори, c_V – концентрація вакансій в точці середовища, де розташована пора; c_V^{eq} – рівноважна концентрація вакансій. Пересичення по вакансіям - $(c_V - c_V^{eq})$ розраховується за рівнянням (9).

8. Нова пора у системі з'являється на міжфазній границі $A|\alpha$ кожного разу, коли ширина фази збільшиться на певну фіксовану величину (Δh) від моменту появи останньої пори. Розмір і положення у дифузійній зоні нової пори визначаються у відповідності до пунктів 5-7.

3. Результати комп'ютерного моделювання.

У відповідності до розробленої моделі пороутворення у фазі α біля її лівої границі виникає пора, яка і з плином часу переміщується в глибину об'єму. По мірі руху пори всередині фази α концентрація вакансій в її околі змінюється. Поки пора знаходиться в тій частині дифузійної зони де існує додатне пересичення по вакансіям (концентрація вакансій більша за рівноважну) вона росте. Коли пора входить в область де концентрація вакансій рівноважна, тобто пересичення рівне нулю, ріст припиняється і її розмір залишається незмінним. Якщо в місці розташування пори пересичення по вакансіям стає від'ємним (концентрація вакансій менша за рівноважну), вона починає зменшуватись. Джерела/стоки вакансії діють, як на границях фази α (на лівій границі – стоки, на правій - джерела), так і в її об'ємі. Ефективність їх роботи визначає певний параметр - час релаксації вакансій, чим меншим є його значення, тим краще працюють відповідні джерела/стоки вакансій.

Нові пори з'являються з певною регулярністю у фазі α біля її лівої границі. Через певний час експерименту, в результаті чисельних розрахунків, отримуємо набір пор різного розміру розташованих вздовж дифузійної зони (Рис.3). Кожна точка на графіку - це пора певного розміру розташована всередині фази α (координата відносно вісі $X/\Delta X$ - відстань від лівої границі фази до пори; координата відносно вісі R/R_0 - радіусу пори). Пора зникає, якщо її радіус став меншим початкового значення R_0 . По мірі росту фази α змінюється і розподіл концентрації нерівноважних вакансій в дифузійній зоні (Рис.4).

Чисельні розрахунки проводились при наступних параметрах системи: $D_V=10^{-10}$ м²/с; $D_A=10^{-14}$ м²/с; $D_B=10^{-15}$ м²/с; $c_A=0.7$; $c_B=0.3$; $\Delta c=0.01$; $R_0=10^{-9}$; $\Delta x_0=10^{-8}$ м, $\Delta x_K=10^{-7}$ м; $\Delta h=10^{-8}$ м $x_0=10^{-10}$ м.

Розглянемо наступні випадки:

I) Джерела/стоки вакансій ефективно працюють лише на правій границі фази α : $\tau_{Vg}=10^{-2}$ с; $\tau_{VL}=10^{-2}$ с, $\tau_{VR}=10^{-5}$ с. На лівій границі, де стоки працюють слабо, виникає значне додатне пересичення по вакансіям, яке сприяє росту пор. З плином часу кількість пор у системі збільшується, а пересичення по вакансіям зменшується (Рис.3, Рис.4).

II) Джерела/стоки вакансій ефективно працюють лише на лівій границі фази α : $\tau_{Vg}=10^{-2}$ с; $\tau_{VL}=10^{-5}$ с, $\tau_{VR}=10^{-2}$ с. Додатне пересичення по вакансіям на лівій границі є суттєво меншим ніж у передньому випадку, оскільки стоки працюють добре, тому повільніше відбувається ріст пор, і меншим є максимальний радіус пори (Рис.5). Пересичення по вакансіях на лівій границі спочатку зростає, а потім зменшується (Рис.6).

III) Джерела/стоки вакансій ефективно працюють, як в об'ємі фази α , так і на її правій границі: $\tau_{Vg}=10^{-5}$ с; $\tau_{VL}=10^{-2}$ с, $\tau_{VR}=10^{-5}$ с. Отриманий розподіл пор за розмірами значно відрізняється від випадків I) та II). Переважна більшість пор, що існують у системі, має однаковий розмір (Рис.7). З часом кількість пор зростає, але їх максимальний радіус залишається незмінним. Такі особливості розподілу обумовлені тим, що з самого початку процесу встановлюється рівноважна концентрація вакансій майже у всьому об'ємі фази, за виключенням вузьких зон біля її лівої і правої границь (Рис.8). Подібні результати (розподіл пор за розмірами, пересичення по вакансіях у фазі α) отримуємо і для інших випадків, коли джерела/стоки вакансій ефективно працюють в об'ємі фази α ($\tau_{Vg} \ll \tau_{VR}$, $\tau_{VL} \ll \tau_{VR}$) та ($\tau_{Vg} \ll \tau_{VR}$, $\tau_{Vg} \ll \tau_{VL}$).

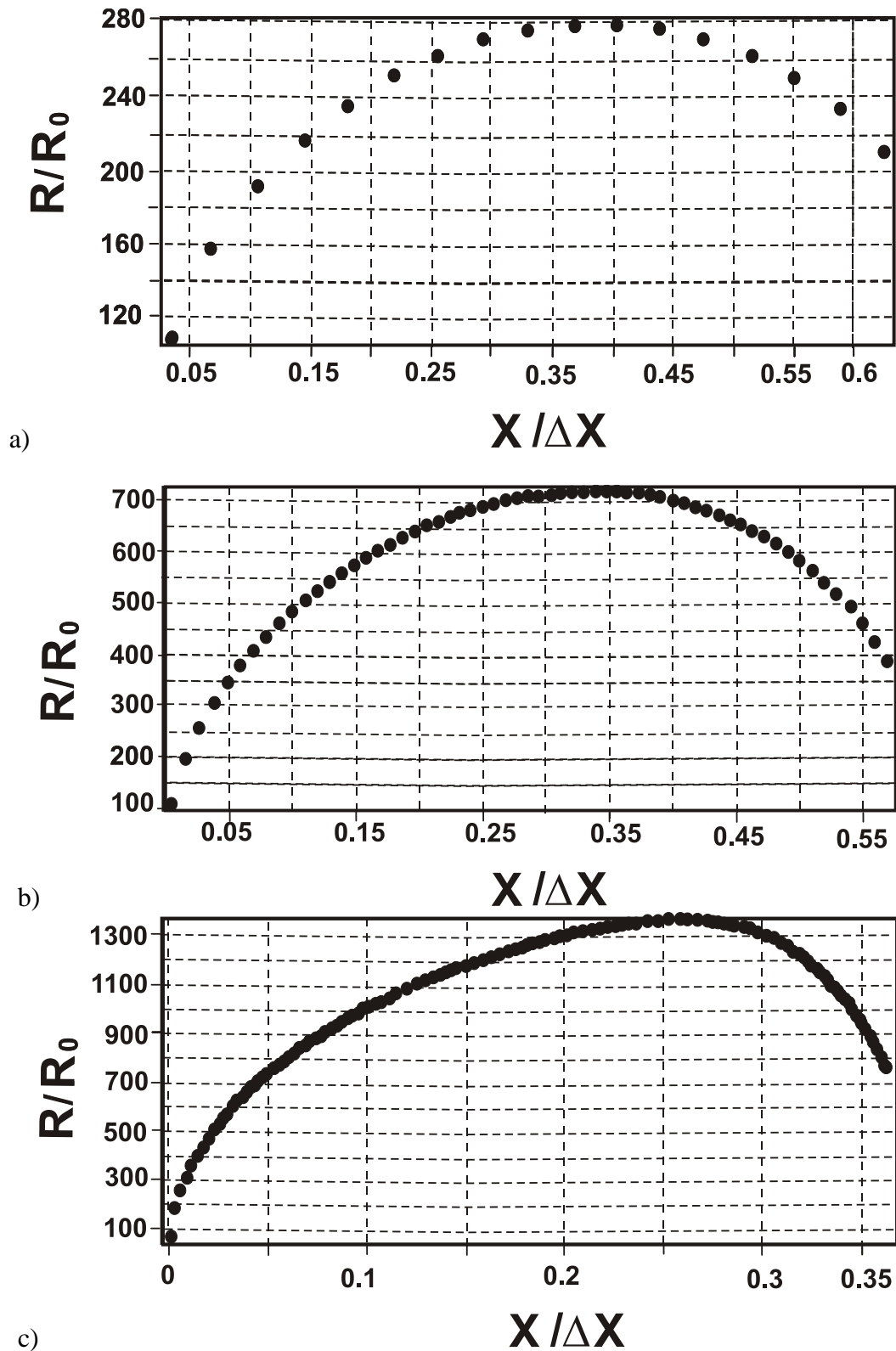


Рис. 3. Розподіл пор за розмірами у фазі α (випадок I).
 a) $t=10^3$ c; b) $t=10^4$ c; c) $t=10^5$ c (R- радіус пори, $R_0 = 10^{-9}$ м; X- координата пори;
 ΔX - ширина фази α ; t – час експерименту).

Fig. 3. The void size distribution in the phase α (case I).
 a) $t=10^3$ s; b) $t=10^4$ s; c) $t=10^5$ s (R- void radius, $R_0 = 10^{-9}$ m; X- void coordinate;
 ΔX - width of the phase α ; t – experiment time).

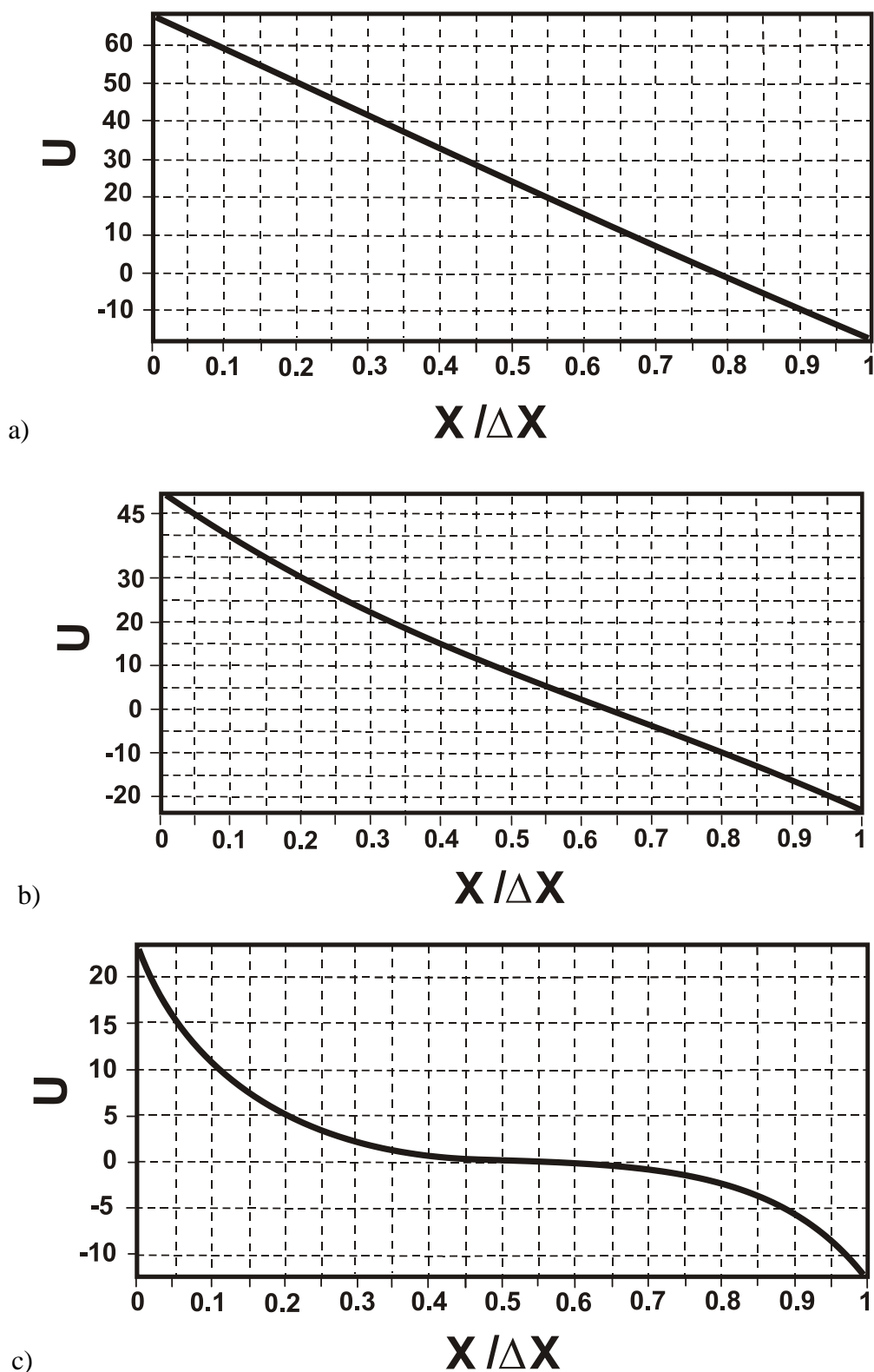


Рис. 4. Пересичення по вакансіям у фазі α (випадок I).
 a) $t=10^3$ с; b) $t=10^4$ с; c) $t=10^5$ с ($U = (c_v - c_v^{eq}) \cdot 10^8$ - пересичення по вакансіям;
 X - координата пори; ΔX - ширина фази α ; t – час експерименту).
 Fig. 4. The vacancy supersaturation in the phase α (case I).
 a) $t=10^3$ s; b) $t=10^4$ s; c) $t=10^5$ s ($U = (c_v - c_v^{eq}) \cdot 10^8$ -vacancy supersaturation ;
 X - void coordinate; ΔX - width of the phase α ; t – experiment time).

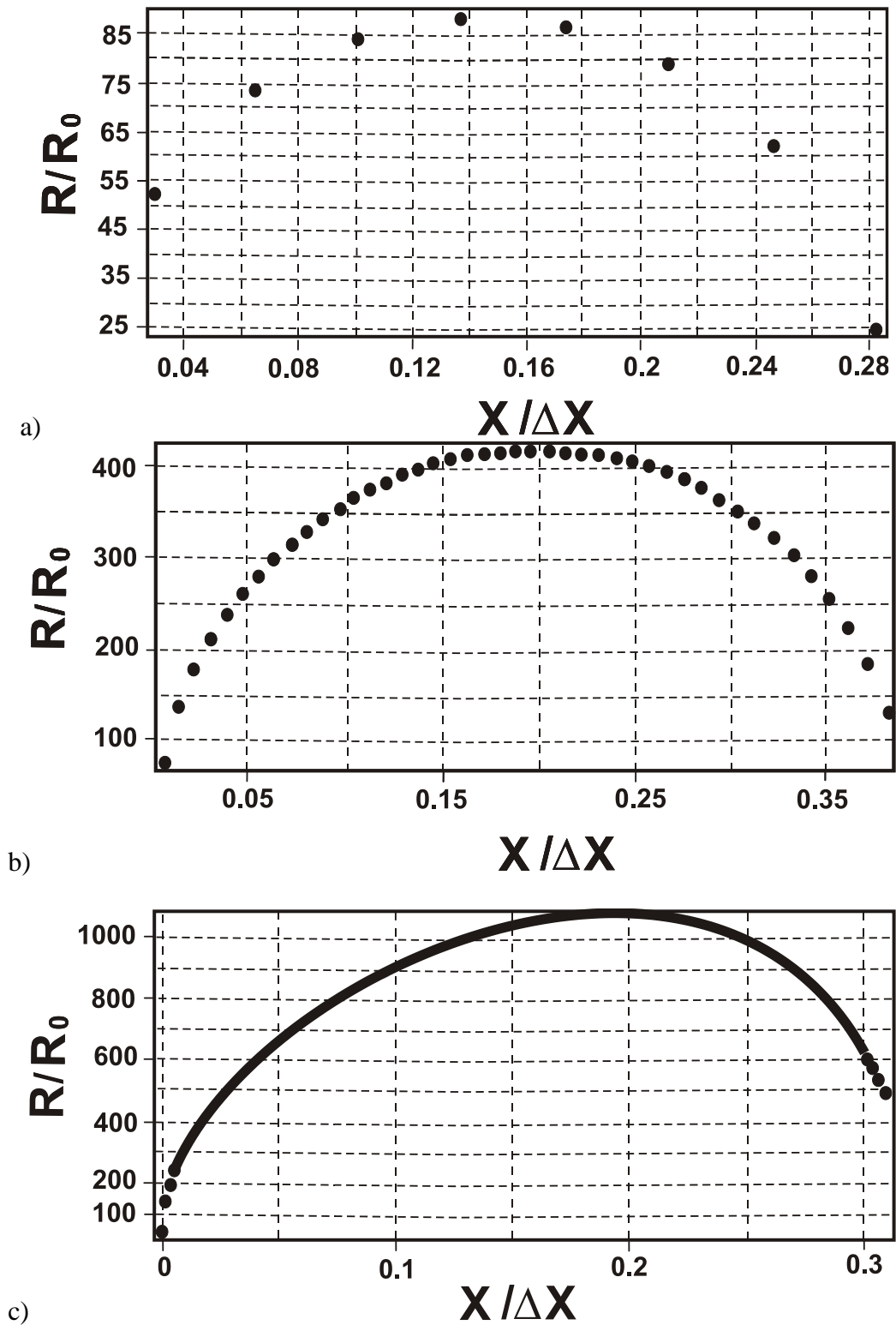
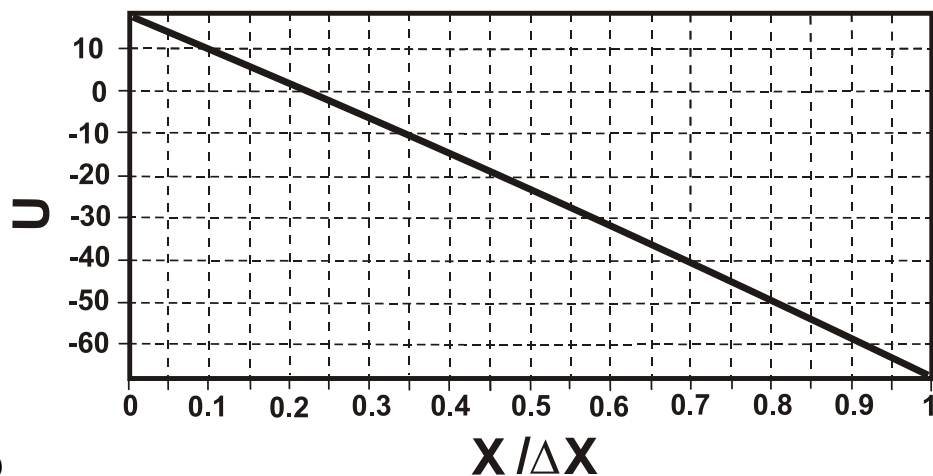
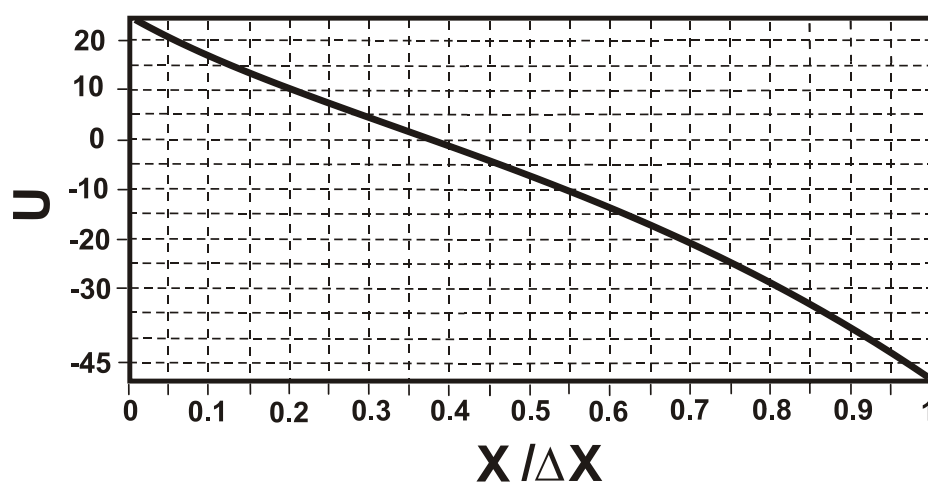


Рис. 5. Розподіл пор за розмірами у фазі α (випадок II).
 a) $t=10^3$ с; b) $t=10^4$ с; c) $t=10^5$ с (R- радіус пори, $R_0 = 10^{-9}$ м; X- координата пори;
 ΔX - ширина фази α ; t – час експерименту).

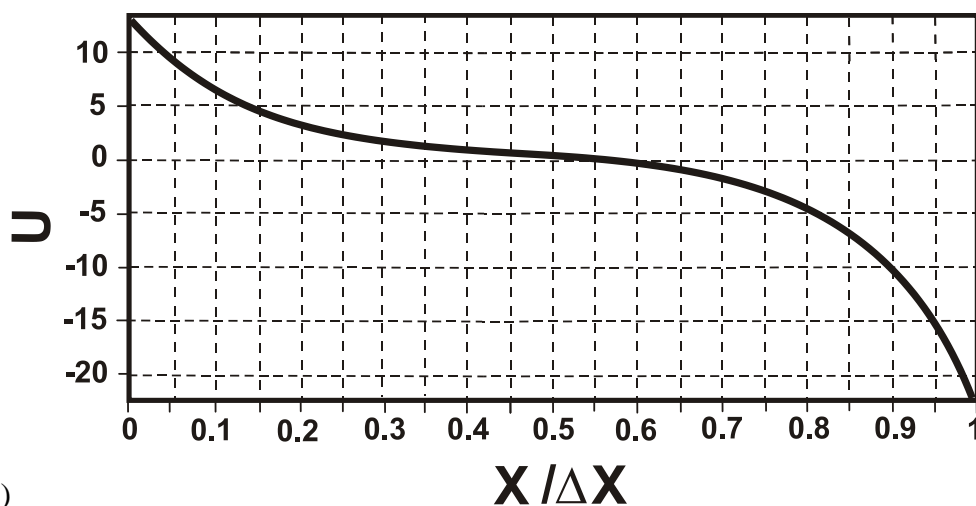
Fig. 5. The void size distribution in the phase α (case II).
 a) $t=10^3$ s; b) $t=10^4$ s; c) $t=10^5$ s (R- void radius, $R_0 = 10^{-9}$ m; X- void coordinate;
 ΔX - width of the phase α ; t – experiment time).



a)



b)



c)

Рис. 6. Пересичення по вакансіям у фазі α (випадок II).

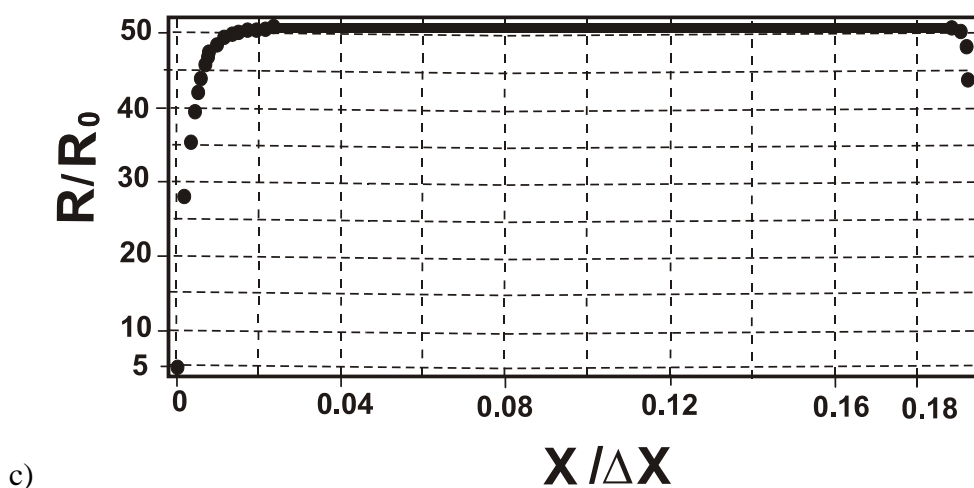
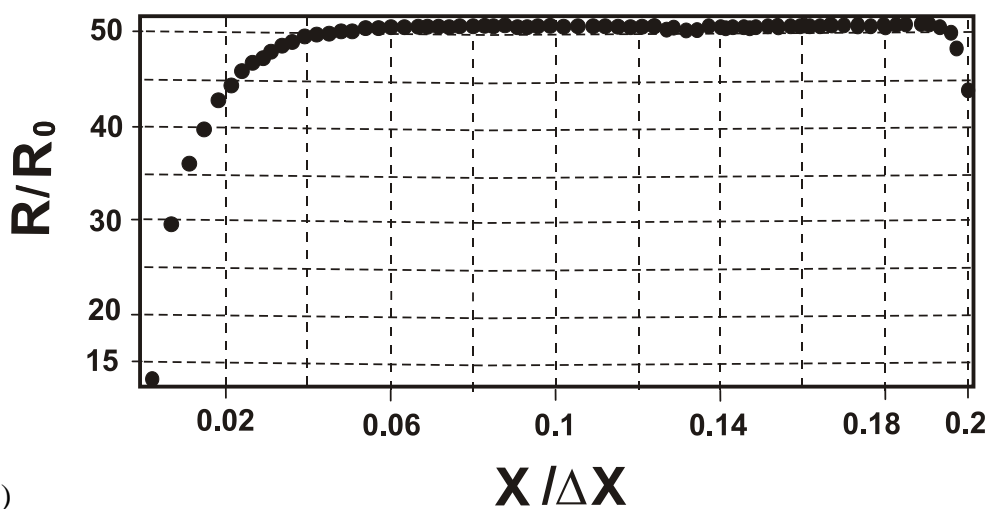
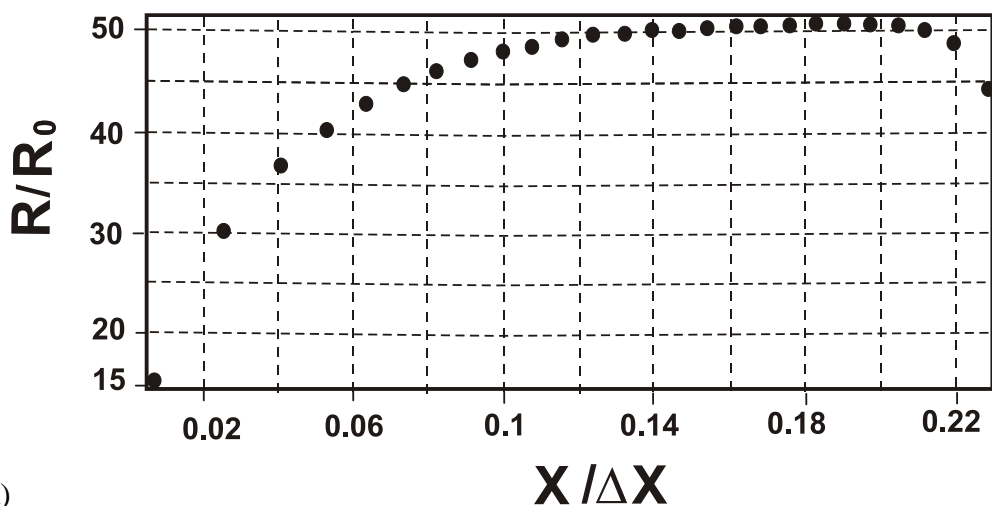
a) $t=10^3$ c; b) $t=10^4$ c; c) $t=10^5$ c ($U = (c_V - c_V^{eq}) \cdot 10^8$ - пересичення по вакансіям;

X- координата пори; ΔX - ширина фази α ; t – час експерименту).

Fig. 6. The vacancy supersaturation in the phase α (case II).

a) $t=10^3$ s; b) $t=10^4$ s; c) $t=10^5$ s ($U = (c_V - c_V^{eq}) \cdot 10^8$ -vacancy supersaturation;

X- void coordinate; ΔX - width of the phase α ; t – experiment time).

Рис. 7. Розподіл пор за розмірами у фазі α (випадок III).

a) $t=10^3$ с; b) $t=10^4$ с; c) $t=10^5$ с (R - радіус пори, $R_0 = 10^{-9}$ м; X - координата пори; ΔX - ширина фази α ; t – час експерименту).

Fig. 7. The void size distribution in the phase α (case III).

a) $t=10^3$ s; b) $t=10^4$ s; c) $t=10^5$ s (R - void radius, $R_0 = 10^{-9}$ m; X - void coordinate; ΔX - width of the phase α ; t —experiment time).

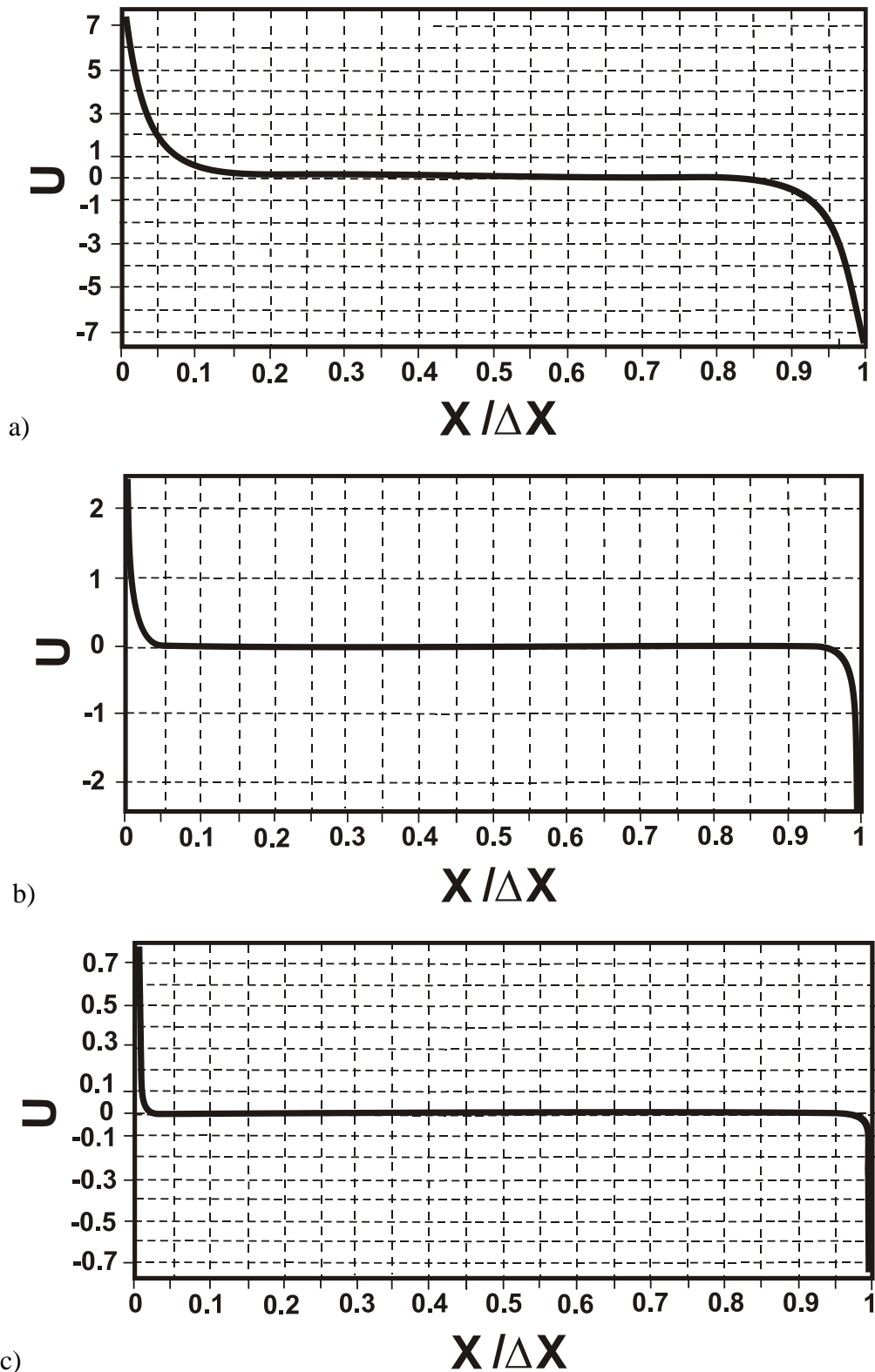


Рис. 8. Пересичення по вакансіям у фазі α (випадок III)

a) $t=10^3$ c; b) $t=10^4$ c; c) $t=10^5$ c ($U = (c_V - c_V^{eq}) \cdot 10^8$ - пересичення по вакансіям; X - координата пори; ΔX - ширина фази α ; t – час експерименту).

Fig. 8. The vacancy supersaturation in the phase α (case III).

a) $t=10^3$ s; b) $t=10^4$ s; c) $t=10^5$ s ($U = (c_V - c_V^{eq}) \cdot 10^8$ -vacancy supersaturation ; X- void coordinate; ΔX - width of the phase α ; t – experiment time).

4. Висновки

Шляхом комп'ютерного моделювання проведено дослідження впливу на кінетику пороутворення при реакційної дифузії у бінарній системі джерел/стоків вакансій двох видів (в залежності від місця їх розташування: в об'ємі фази, та на її міжфазних границях). У разі ефективної роботи джерел/стоків вакансій тільки на границях (їх дія в об'ємі фази заморожена) отримуємо значне пересичення по вакансіях в дифузійній зоні, що призводить до швидкого росту пор, та існування суттєвого розкиду пор за розмірами. Якщо добре працюють джерела/стоки вакансій в об'ємі (ефективність їх роботи на границях в цьому випадку не впливає на результат), то відразу майже скрізь у системі встановлюється рівноважна концентрація вакансій, в наслідок чого пори виростають до розмірів, які суттєво менші у порівняння з попереднім випадком, а переважна їх більшості має однакові (максимальні) розміри.

Список використаної літератури:

1. Tu K. N. Recent advances on electromigration in very-large-scale-integration of interconnects // *Journal of Applied Physics*. – 2003. – Vol. 94. – P. 5451 – 5473. Режим доступу: <https://doi.org/10.1063/1.1611263>
2. Chang, Y. W. et al. Study of electromigration-induced formation of discrete voids in flip-chip solder joints by in-situ 3D laminography observation and finite-element modeling // *Acta Materialia*. – 2016. – Vol. 117. – P. 100–110. Режим доступу: <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2016.06.059>
3. Yuan-Wei Chang, Yin Cheng, Lukas Helfen, Feng Xu, Tian Tian, et al. Electromigration Mechanism of Failure in Flip-Chip Solder Joints Based on Discrete Void Formation// *Scientific Reports*. - 2017. – Vol. 7. – P. (17950)1-16. Режим доступу: <https://doi.org/10.1038/s41598-017-06250-8>
4. R. An, Y. Tian, R. Zhang, C. Wang Electromigration-induced intermetallic growth and voids formation in symmetrical Cu/Sn/Cu and Cu/Intermetallic compounds (IMCs)/Cu joints//*J Mater Sci: Mater. Electron* – 2015. – Vol.26. – P. 2674 – 2681. Режим доступу: <https://doi.org/10.1007/s10854-015-2736-6>
5. Hsuan-Ling Hsu, Hsuan Lee, Chi-Wei Wang, Chenju Liang, Chih-Ming Chen Impurity evaporation and void formation in Sn/Cu solder joints// *Materials Chemistry and Physics*. -2019. – Vol. 225. – P. 153-158. Режим доступу: <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2018.12.036>
6. Gusak, A. M. Moving interphase interfaces as vacancy generators, vacancy gradients, nonparabolic growth and all that // *The Minerals, Metals & Materials Society*. – 1994. – P. 1133-1138. Режим доступу: <http://eprints.cdu.edu.au/id/eprint/2169>
7. Gusak A., Kornienko S., Lutsenko G. Nonequilibrium vacancies in nanosystems // *Defect and Diffusion Forum* – 2007. – Vol.264. – P. 109-116 Режим доступу: <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/DDF.264.109>
8. Gusak, A., Kornienko S., Storozhuk N., Zaporozhets T. Influence of Limited Efficiency and Competition of Vacancy Sinks/Sources on the Diffusion-Controlled Intermediate Phase Growth // *Diffusion Foundations* – 2014. –2.- P. 141-158 Режим доступу: <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/DF.2.141>
9. Корниенко С.В., Модель реакционной диффузии в бинарной системе, учитывающая действие источников и стоков вакансий в материнских фазах. // *Металлофизика и новейшие технологии*. – 2013. – Т.35, №12. – С.1685-1696 Режим доступу: <http://dspace.nbuv.gov.ua/handle/123456789/104268>
10. Корниенко С.В., Гусак А.М. Влияние источников и стоков вакансий на кинетику реакционной диффузии в бинарной системе // *Металлофизика и новейшие*

технології. – 2015. – Т.37, №10, – С.1001-1016. Режим доступу: <https://doi.org/10.15407/mfint.37.10.1297>

11. Сторожук Н.В., Гусак А.М. Конкуренція ефектів Киркендалла і Френкеля при взаємній дифузії // *Металлофізика і новітні технології*. – 2014. – Т. 36, № 3. – С. 367-374. Режим доступу: <http://dspace.nbuv.gov.ua/handle/123456789/104131>

12. Zaporozhets T.V., Storozhuk N.V., Gusak A.M. Competition of Voiding and Kirkendall Shift during Compound Growth in Reactive Diffusion–Alternative Models // *Металлофізика і новітні технології*. — 2016. — Т. 38, № 10. — С. 1279-1292. Режим доступу: <https://doi.org/10.15407/mfint.38.10.1279>

13. Колісник Л.І., Корнієнко С.В. Моделювання росту пор при реакційній дифузії у бінарній системі.//*Вісник Черкаського університету, серія фізико – математичні науки*. – 2018. – № 1. – С.21 – 28. Режим доступу: <https://doi.org/10.31651/2076-5851-2018-1-21-28>

14. Чувтаєв Ю.В., Корнієнко С.В. Моделювання розподілу пор за розмірами в дифузійній зоні// *Вісник Черкаського університету, серія фізико – математичні науки* *Вісник Черкаського університету*. – 2019.- Випуск№1. - С. 96-106. Режим доступу: <https://doi.org/10.31651/2076-5851-2019-1-96-106>

References

1. Tu K. N. Recent advances on electromigration in very-large-scale-integration of interconnects // *Journal of Applied Physics*. – 2003. – Vol. 94. – P. 5451 – 5473. Retrieved from <https://doi.org/10.1063/1.1611263>

2. Chang, Y. W. et al. Study of electromigration-induced formation of discrete voids in flip-chip solder joints by in-situ 3D laminography observation and finite-element modeling // *Acta Materialia*. – 2016. – Vol. 117. – P. 100–110. Retrieved from <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2016.06.059>

3. Yuan-Wei Chang, Yin Cheng, Lukas Helfen, Feng Xu, Tian Tian, et al. Electromigration Mechanism of Failure in Flip-Chip Solder Joints Based on Discrete Void Formation// *Scientific Reports*. - 2017. – Vol. 7. – P. (17950)1-16. Retrieved from <https://doi.org/10.1038/s41598-017-06250-8>

4. R.An, Y.Tian, R.Zhang, C.Wang Electromigration-induced intermetallic growth and voids formation in symmetrical Cu/Sn/Cu and Cu/Intermetallic compounds (IMCs)/Cu joints//*J Mater Sci:Mater.Electron* – 2015. – Vol.26. – P. 2674 – 2681. Retrieved from <https://doi.org/10.1007/s10854-015-2736-6>

5. Hsuan-Ling Hsu, Hsuan Lee, Chi-Wei Wang, Chenju Liang, Chih-Ming Chen Impurity evaporation and void formation in Sn/Cu solder joints// *Materials Chemistry and Physics*. -2019. – Vol. 225. – P. 153-158. Retrieved from <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2018.12.036>

6. Gusak, A. M. Moving interphase interfaces as vacancy generators, vacancy gradients, nonparabolic growth and all that // *The Minerals, Metals & Materials Society*. – 1994. – P. 1133-1138. Retrieved from <http://eprints.cdu.edu.ua/id/eprint/2169>

7. Gusak A., Kornienko S., Lutsenko G. Nonequilibrium vacancies in nanosystems // *Defect and Diffusion Forum* – 2007. – Vol.264. – P. 109-116 Retrieved from <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/DDF.264.109>

8. Gusak, A., Kornienko S., Storozhuk N., Zaporozhets T. Influence of Limited Efficiency and Competition of Vacancy Sinks/Sources on the Diffusion-Controlled Intermediate Phase Growth // *Diffusion Foundations* – 2014. –2.- P. 141-158 Retrieved from <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/DF.2.141>

9. Kornienko S.V. Model of reaction diffusion in a binary system, considering action of sources and sinks of vacancies in parent phases // *Металлофізика і новітні*

технологи. – 2013. – Т.35, №12. – С.1685-1696 Retrieved from <http://dspace.nbu.gov.ua/handle/123456789/104268>

10. Kornienko S.V., Gusak A.M. Influence of vacancy sources and sinks on the kinetics of the reaction diffusion in a binary system // *Металлофізика и новейшие технологи.* – 2015. – Т.37, №10, – С.1001-1016. Retrieved from <https://doi.org/10.15407/mfint.37.10.1297>

11. Storozhuk N.V., Gusak A.M. Competition of the kirkendall and frenkel effects at reaction diffusion // *Металлофізика и новейшие технологи.* – 2014. – Т. 36, № 3. – С. 367-374. Retrieved from <http://dspace.nbu.gov.ua/handle/123456789/104131>

12. Zaporozhets T.V., Storozhuk N.V., Gusak A.M. Competition of Voiding and Kirkendall Shift during Compound Growth in Reactive Diffusion–Alternative Models // *Металлофізика и новейшие технологи.* — 2016. — Т. 38, № 10. — С. 1279-1292. Retrieved from <https://doi.org/10.15407/mfint.38.10.1279>

13. Kolisnyk L.I., Kornienko C.V. Modeling of void formation during the process of reaction diffusion in a binary system // *Visnyk Cherkaskoho Universytetu. Seriiia «Fizyko-Matematychni Nauky»* (Bulletin of Cherkasy University. Series "Physics and Mathematics"). – 2018. – № 1. – P.21 – 28. Retrieved from <https://doi.org/10.31651/2076-5851-2018-1-21-28>

14. Chuvtaiev Yu.V., Kornienko S.V. Modeling of void distribution by size at the diffusion zone// *Visnyk Cherkaskoho Universytetu. Seriiia «Fizyko-Matematychni Nauky»* (Bulletin of Cherkasy University. Series "Physics and Mathematics"). – 2019.- №1. - P. 96-106. Retrieved from <https://doi.org/10.31651/2076-5851-2019-1-96-106>

S. V. Kornienko

Candidate of Physical and Mathematical Sciences, docent,
Educational and Scientific Institute of Information and Educational Technologies,
The Bohdan Khmelnytsky National University of Cherkasy, Cherkasy, Ukraine,
semen@phys.cdu.edu.ua

MODELING OF VOID FORMATION UNDER REACTION DIFFUSION IN BINARY SYSTEM

The proposed model of void formation takes into account existence two types of sinks/sources of non-equilibrium vacancies, depending on their location: in the phase volume and at the interfacial boundaries. At the interdiffusion and reaction diffusion which happens on the vacancy atomic diffusion mechanism, the inequality of atoms fluxes is caused by their differential mobility, give rise to a directional flux of vacancies. This flux of vacancies cause an appearance of areas in a diffusion zone with supersaturation and deficiency in vacancies, where sinks/sources of non-equilibrium vacancies act. It is believed that the voids arise with a certain periodicity near the interfacial boundary, where there is a vacancy supersaturation due to the different mobility of the components. The voids move in volume of growing phase, their sizes change. The void radius increases as long as void is in the region of the diffusion zone where there is a vacancy supersaturation. The void radius begins to decrease if the void is in the area of the diffusion zone, where there is a negative vacancy supersaturation (the concentration of vacancies is less than the equilibrium) until it disappears. The study of the influence on the kinetics of void formation during reaction diffusion in the binary system of sinks/sources of vacancies was carried out by computer simulation. In the case of efficient operation of vacancies sinks/sources only at the borders (vacancies sinks/sources do not work

in the phase volume) we get a significant saturation of vacancies in the diffusion zone, which leads to rapid voids growth and the existence of significant pore size differences. If the vacancies sinks/sources in the volume work well (the efficiency of their work at the interfacial boundaries does not affect the result in this case), then almost everywhere in the system an equilibrium concentration of vacancies is established, as a result of which the vast majority of pores have the same (maximum) size. The pore sizes are much smaller than with the previous case.

Keywords: void, void size distribution, non-equilibrium vacancies, reaction diffusion, binary system.

*Одержано редакцією 12.10.2021
Прийнято до друку 19.11.2021*