

ПЕРЕОХЛАЖДЕНИЕ ПРИ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ ЖИДКОЙ ФАЗЫ ЛЕГКОПЛАВКОГО КОМПОНЕНТА В МНОГОСЛОЙНЫХ ПЛЕНКАХ С РАЗЛИЧНЫМ ХАРАКТЕРОМ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ КОНТАКТНЫХ ПАР

С. И. Петрушенко, С. В. Дукаров, В. Н. Сухов

*Харьковский национальный университет имени В. Н. Каразина,
Харьков, Украина*

Поступила в редакцию 11.10.2016

Проведено исследование переохлаждения при кристаллизации жидкой фазы олова и индия в многослойных пленках на основе меди и молибдена. При помощи *in situ* метода измерения электросопротивления определены величины переохлаждений в данных системах. Показано, что метод измерения электросопротивления чувствителен ко многим процессам, происходящим в многослойных бинарных системах, однако уверенное определение температур фазовых переходов плавление-кристаллизация возможно только для контактных пар с простым типом взаимодействия и отсутствием химических соединений.

Ключевые слова: переохлаждение при кристаллизации, многослойные пленки, плавление-кристаллизация.

ПЕРЕОХОЛОДЖЕННЯ ПРИ КРИСТАЛІЗАЦІЇ РІДКОЇ ФАЗИ ЛЕГКОПЛАВКОГО КОМПОНЕНТУ У БАГАТОШАРОВИХ ПЛІВКАХ З РІЗНИМ ХАРАКТЕРОМ ВЗАЄМОДІЇ КОНТАКТНИХ ПАР

С. І. Петрушенко, С. В. Дукаров, В. М. Сухов

Проведено дослідження переохолодження під час кристалізації розплаву олова та індію у багатошарових плівках на основі міді та молибдену. За допомогою *in situ* методу вимірювання електричного опору визначені величини переохолодження у цих системах. Показано, що метод вимірювання електричного опору є чутливим до багатьох процесів, що спостерігаються у багатошарових бінарних системах, але надійно визначати температури фазових перетворень плавлення-кристалізація можливо лише у контактних парах з простим типом взаємодії та відсутністю хімічних сполук.

Ключові слова: переохолодження при кристалізації, багатошарові плівки, плавлення-кристалізація.

SUPERCOOLING DURING THE CRYSTALLIZATION OF THE LIQUID PHASE OF THE FUSIBLE COMPONENT IN MULTILAYER FILMS WITH DIFFERENT NATURE OF CONTACT PAIRS INTERACTION

S. I. Petrushenko, S. V. Dukarov, V. N. Sukhov

The study of supercooling during the crystallization of the liquid phase of tin and indium in multilayer films based on copper and molybdenum has been carried out. Using the *in situ* method of measuring the electrical resistance, the values of supercooling have been determined in the given systems. It is shown that the electrical resistance measurement method is sensitive to many processes occurring in multilayered binary systems, however, a reliable determination of phase transition temperature melting-crystallization is possible only for the contact pairs with a simple type of interaction and the absence of chemical compounds.

Keywords: supercooling during the crystallization, multilayer films, melting-crystallization.

ВВЕДЕНИЕ

Интерес исследователей к изучению вопросов, связанных с переохлаждением при кристаллизации жидкой фазы различных веществ, имеет многолетнюю историю [1–5] и обусловлен как прикладным значением данного явления, так и стремлением

к фундаментальному пониманию особенностей вещества, находящегося в метастабильном состоянии. В последнее время особый интерес стали привлекать системы типа «частица в матрице» и иные композитные материалы, состоящие из веществ с существенно различными физическими

свойствами: электрическими, механическими, химическими, а также значительно отличающимися температурами фазовых переходов. Результаты ряда работ [6, 7, 8] позволили установить, что плавление и кристаллизация слоев легкоплавкого компонента в многослойных пленках (которые зачастую рассматриваются как модель системы «легкоплавкая частица в тугоплавкой матрице») сопровождаются значительным изменением электрических свойств всего образца. Отметим, что данное явление имеет два аспекта, которые могут заинтересовать исследователей и практиков. Так, с одной стороны, изменение сопротивления при фазовых переходах может быть использовано для регистрации их температуры в тех случаях, когда применение других, в частности, прямых методов затруднительно, либо вообще невозможно. С другой стороны, такие системы представляют самостоятельный интерес как активные компоненты перспективных датчиков, элементов памяти, переключателей и других электронных устройств с характерным размером, исчисляемым нанометрами.

Однако большинство работ, в которых для исследования переохлаждения при кристаллизации частиц жидкой фазы в контакте с кристаллической матрицей использовался метод измерения электросопротивления, посвящены изучению систем с фазовыми диаграммами типа простая эвтектика, либо тем контактными парам, фазовые диаграммы которых, ввиду крайне слабого взаимодействия компонент, в литературе отсутствуют. В то же время с точки зрения прикладных исследований весьма перспективными могут оказаться контактные пары с более сложным характером фазовых диаграмм. Кроме того, сопротивление пленок обладает высокой чувствительностью к процессам, происходящим на межфазных поверхностях (границах кристаллитов, элементов и фаз). Так, в ряде работ [9, 10] измерение электросопротивления использовано для изучения влияния размерного эффекта на растворимость и диффузию в тонких пленках. Также разумно предположить, что сопротивление окажется чувствительным не только к плавлению и кристаллизации легкоплавкого компонента, но и к другим фазовым переходам, которые могут реализовываться в различных контактных парах.

Подобные эффекты, которые несут дополнительную информацию о процессах, протекающих в многослойных структурах, очевидно, могут быть интересны исследователям, однако они значительно усложняют регистрацию собственно плавления и кристаллизации легкоплавкого компонента в таких структурах. В связи с этим представляется целесообразным изучение температурной зависимости сопротивления многослойных пленок, компоненты которых образуют различные фазовые диаграммы, с целью установления возможности использования метода измерения электросопротивления для регистрации переохлаждения при кристаллизации легкоплавкого компонента в контактных парах с существенно различным типом взаимодействия.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В качестве объектов исследования были выбраны двух- и трехслойные пленки бинарных систем Mo-In, Mo-Sn, Cu-In и Cu-Sn, в которых слой легкоплавкого компонента находился либо на поверхности, либо между сплошными слоями более тугоплавкого. Образцы получались методом послойной вакуумной конденсации при давлении остаточных газов 10^{-6} мм рт. ст. путем испарения компонент из молибденовых (In, Cu), танталовых (Sn) или вольфрамовых (Mo) испарителей. Контроль толщины осаждаемых компонент осуществлялся при помощи кварцевого резонатора.

Для определения температур фазовых переходов пленки конденсировались на измерительные ячейки, представляющие собой стеклянные пластинки с нанесенными электрическими контактами, обеспечивающими регистрацию сопротивления по четырехточечной схеме. Измерение температуры ячейки осуществлялся при помощи хромель-алюмелевой термопары, а её нагрев — излучением вольфрамовой спирали, расположенной с тыльной стороны ячейки и питаемой стабилизированным источником тока. Для автоматической регистрации температуры и соответствующей величины сопротивления использовался оригинальный программно-аппаратный комплекс на базе прецизионного АЦП.

Образцы для электронографических исследований осаждались на свежие сколы монокристаллов КС1 и исследовались в электронном микроскопе ЭМВ 100БР, оснащенный разработанной в лаборатории приставкой для *in situ* электронографических исследований образцов при их нагреве и охлаждении. Электроноскопические исследования проводились в растровом электронном микроскопе JEOL JSM-840.

Выбранные для исследования системы кардинально различаются по характеру взаимодействия компонент. Так, в литературе отсутствуют построенные фазовые диаграммы контактной пары молибден-индий, однако отмечается, что компоненты этой системы не образуют химических соединений, а их взаимная растворимость чрезвычайно мала. Взаимодействие остальных контактных пар оказывается значительно более сложным и для них характерно образование сплавов, химических соединений и существенная взаимная растворимость компонент.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 представлены результаты измерения зависимости сопротивления от температуры однокомпонентных пленок меди и молибдена, составляющих основу исследуемых объектов. Установлено, что в первом цикле нагрева, начиная с температуры около 100 °С (Cu) и 150–200 °С (Mo), их электросопротивление необратимо снижается, что свидетельствует о совершенствовании изначально дефектной структуры конденсата. В дальнейшем нагрев

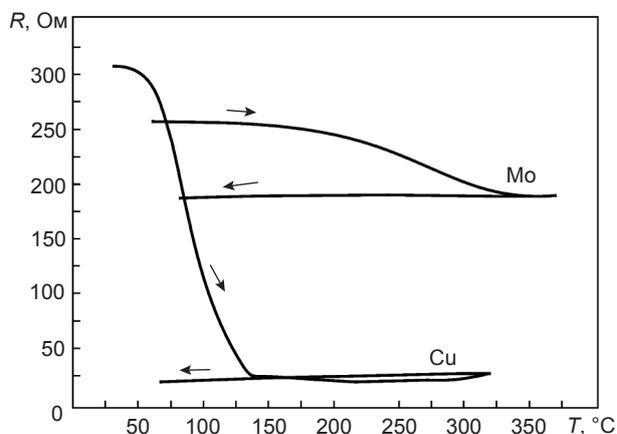


Рис. 1. Зависимость сопротивления пленок меди и молибдена от температуры в первом цикле нагрев-охлаждение

и охлаждение пленок меди и молибдена сопровождается закономерным линейным изменением их электросопротивления и не обнаруживает никаких особенностей. Соответственно все особенности, которые могут быть обнаружены в многослойных пленках, будут однозначно обусловлены влиянием легкоплавкого компонента.

Результаты исследования температурной зависимости сопротивления пленок Mo-In-Mo представлены на рис. 2. Начиная со второго цикла нагрев-охлаждение на графиках зависимости сопротивления от температуры наблюдаются особенности, которые заключаются в достаточно резком и обратимом, в рамках всего цикла нагрев-охлаждение, увеличении (нагрев) и снижении (охлаждение) сопротивления трехслойных пленок. Что же касается первого нагрева, то в нём, также как и в случае однослойных пленок молибдена, происходит необратимое снижение электросопротивления, что делает особенность, обусловленную наличием легкоплавкого компонента, практически незаметной. Согласно результатам [6, 7, 8] подобные скачки электросопротивления многослойных пленок могут быть обусловлены плавлением и последующей кристаллизацией переохлажденного индия. Определенная таким способом величина переохлаждения в данной контактной паре составила 65 К. Стоит обратить внимание, что для данной слабо-взаимодействующей контактной пары после завершения отжига молибдена общий вид термической зависимости сопротивления остается постоянным от цикла к циклу. Так, относительное значение скачков практически не меняется от цикла к циклу и составляет около 1 %, что хорошо согласуется со значением, которое следует из модели параллельных проводников [6]. Отметим, что представленные на рис. 2 графики соответствуют пленке, которая уже подверглась одному циклу нагрев-охлаждение, при котором произошел отжиг молибденовой пленки. Избежать «потери» первого цикла нагрева, обусловленной отжигом, можно путем использования пленок Mo-In, в которых слой молибдена перед конденсацией индия подвергся предварительному отжигу. Температурные зависимости сопротивления

таких пленок также обнаруживают скачки, соответствующие плавлению и кристаллизации индия.

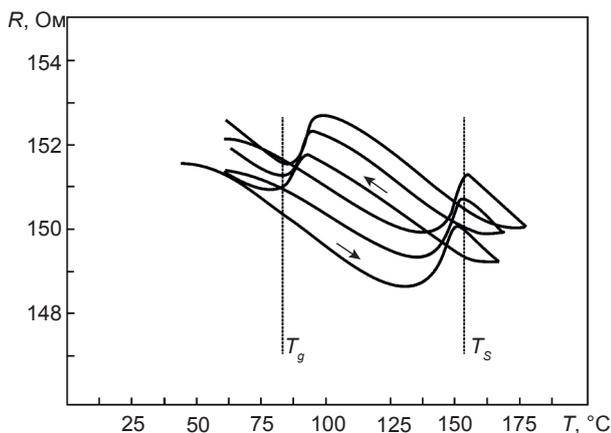


Рис. 2. Сопротивление пленок Mo-In-Mo в зависимости от их температуры

Отметим, что кристаллизация расплава в данной контактной паре происходит в достаточно широком интервале температур — около 10 К. Следовательно, в изучаемых пленках не формируется единая система включений, на существование которой указывается в работе [6] для пленок висмута между слоями металлов. Действительно, при растровых электронно-микроскопических исследованиях было установлено (рис. 3), что индий в пленках Mo-In после цикла нагрев-охлаждение собирается в отдельные частицы, форма которых близка к сферической.

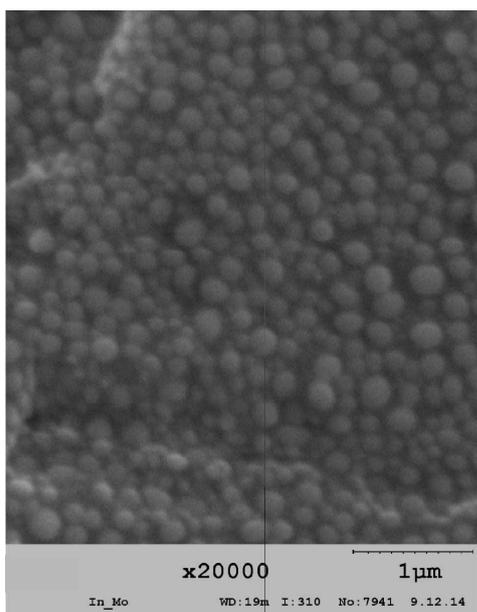


Рис. 3. Электронно-микроскопическое изображение пленки молибден-индий

Следующим объектом исследования стали пленки Mo-Sn. Поскольку фазовая диаграмма данной контактной пары имеет сложный вид и для неё характерно наличие различных фаз, формирование которых возможно уже при первом нагреве, вместо трехслойных пленок Mo-Sn-Mo были использованы двухслойные образцы Mo-Sn, в которых слой молибдена перед осаждением олова подвергался отжигу. На рис. 4 представлены зависимости сопротивления от температуры в пленках Mo-Sn, соответствующие различным циклам нагрев-охлаждение. В первом цикле нагрева (рис. 4, кривая *a*) как на графике нагрева, так и охлаждения имеются скачки электросопротивления. Однако оба этих скачка приводят к увеличению сопротивления пленки, т. е. происходят в одном направлении и соответственно даже в рамках всего цикла нагрев-охлаждение не являются обратимыми. Кроме того, их величина, особенно при охлаждении, многократно превышает значения, которые следует ожидать исходя из модели параллельных проводников. Соответственно не представляется возможным сопоставить их с плавлением и особенно кристаллизацией легкоплавких включений. Во втором цикле нагрева (рис. 4, кривая *б*) на графиках имеются достаточно четкие и в целом обратимые скачки сопротивления, которые, однако, противоположны по направлению скачкам удельного сопротивления олова. По-видимому, такое поведение связано с образованием и возможно распадом

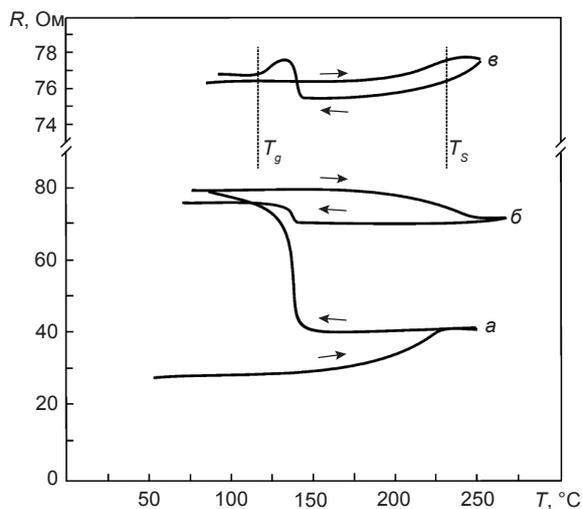


Рис. 4. Зависимость сопротивления от температуры для пленок Mo-Sn в первом (*a*), втором (*б*) и пятом (*в*) циклах нагрев-охлаждение

в образцах в течение нескольких первых циклов нагрев-охлаждение различных фаз и твердых растворов. Это сопровождается контактными эффектами, аналогичными тем, которыми в работе [7] объясняются скачки сопротивления в пленках на основе углерода. Переход свободного олова в жидкое состояние, вероятно, интенсифицирует процесс фазообразования, что объясняет появление существенного скачка, температура которого совпадает с температурой плавления олова.

В третьем, четвертом и пятом циклах нагрев-охлаждение происходит уменьшение относительной величины скачка, соответствующего температуре плавления олова, и последующее изменение его направления с убывания на рост (рис. 4 кривая *в*). При этом скачок, наблюдающийся на графиках охлаждения, приобретает сложную структуру. Так, при охлаждении вначале наблюдается рост сопротивления, который оканчивается при температуре 133 °С, что совпадает со значением, полученным в предыдущих циклах. За ним следует спад электросопротивления, что соответствует изменению удельного сопротивления олова при его кристаллизации. Примерно с пятого цикла характер температурной зависимости электросопротивления качественно перестает меняться от цикла к циклу. Вероятно, лишь начиная с этого цикла мы имеем возможность регистрировать собственно плавление и кристаллизацию легкоплавкого компонента в пленках Mo-Sn. Окончание этого участка и полная кристаллизация олова в пленках происходит при температуре 115 °С.

Восходящий участок на кривой охлаждения, вероятно, может быть сопоставлен с распадом соединения Mo₃Sn, которое согласно литературным данным образуется в этой контактной паре перитектическим путем при температуре 300 ± 100 °С [11, 12].

Результаты исследования температурной зависимости электросопротивления в трехслойных пленках Cu-In-Cu представлены рис. 5 (кривая *а*). Как видим, сопротивление данных образцов после завершения отжига меди линейно зависит от температуры и не имеет существенных особенностей, которые могли бы быть использованы для

идентификации температуры плавления и кристаллизации легкоплавких включений.

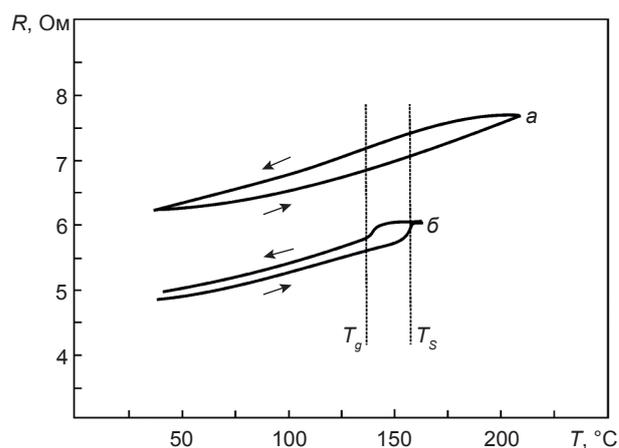


Рис. 5. Зависимость сопротивления в циклах нагрев-охлаждение от температуры для пленок Cu-In-Cu до (*а*) и после (*б*) нагрева до 350 °С

Указанная ситуация реализуется до тех пор, пока образцы нагреваются до температур, несколько выше температуры плавления индия. Однако после нагрева до 350 °С на графиках нагрева и охлаждения начинают наблюдаться обратимые особенности, направления которых совпадают с направлением скачков удельного сопротивления индия при фазовых переходах. Эти скачки, вероятно, соответствуют плавлению и кристаллизации индия. Отметим, что согласно электронографическим исследованиям (рис. 6) подобный нагрев сопровождается появлением и стабилизацией химического соединения Cu₁₁In₉, которое образуется согласно [13] при 310 °С и, вероятно, сосредоточено в зоне контакта индия с окружающей его медью. Соответствующее переохлаждение оказывается равно 20 К, что совпадает с величиной, полученной авторами [2, 4] с использованием метода смены механизма конденсации. Вероятно, именно появление

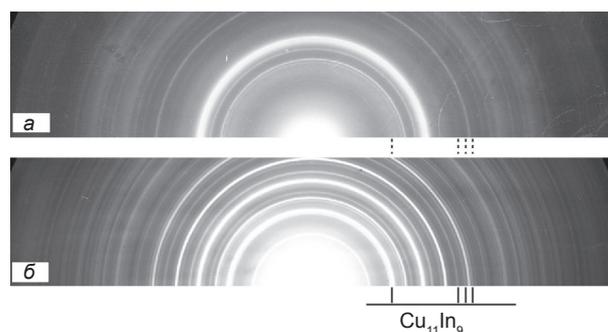


Рис. 6. Электронограммы пленок Cu-In до (*а*) и после (*б*) нагрева до 350 °С

на границе индия и меди данного химического соединения позволяет сделать фазовые переходы наблюдаемыми, однако механизм этого явления требует отдельного изучения. Таким образом, в пленках медь-индий метод измерения электросопротивления, скорее всего, позволяет получить значение переохлаждения для индия, находящегося в контакте не с медью, а с $Cu_{11}In_9$. Малая величина переохлаждения указывает на хорошее смачивание в данной контактной паре.

При исследовании переохлаждения в пленках медь-олово установлено следующее. В случае, если массовая концентрация олова в меди составляет менее 20 %, электросопротивление при нагреве и охлаждении многослойных пленок (за исключением первого цикла нагрева) меняется линейно, и, как и в пленках Cu-In-Cu, не обнаруживает никаких особенностей. В первом же цикле нагрева характер изменения сопротивления в данной системе напоминает отжиг меди, сопровождается необратимым снижением сопротивления и не содержит иных особенностей.

В том же случае, если содержание олова превышает 20 %, то первый цикл нагрева сопровождается рядом особенностей на кривых сопротивления, которые вероятно обусловлены образованием в системе новых фаз (рис. 7а). Во время последующих циклов нагрев-охлаждение зависимость сопротивления от температуры имеет практически линейный характер, но на ней обнаруживаются небольшие особенности, направление которых совпадает с направлением скачка удельного сопротивления олова при фазовом переходе (рис. 7б). Этот факт, а также обратимый характер этих особенностей позволяет соотнести их с плавлением и кристаллизацией оставшегося несвязанного олова. Определенное таким образом значение переохлаждения в пленках Cu-Sn составляет 45 К, что несколько превышает величину $\Delta T \approx 35$ К, известную из литературы [2, 4]. Отметим, что при нагреве образцов до температуры более 300 °С наблюдается быстрый рост электросопротивления. Потеря проводимости свидетельствует о том, что изначально сплошная пленка распадается при данной температуре на отдельные островки.

Дальнейшее повышение концентрации олова ещё больше стимулирует распад пленок, который происходит уже при температуре плавления олова.

Вероятно, такое поведение образцов Cu-Sn можно объяснить следующим. Как следует из [14], при осаждении пленок Cu-Sn путем послойной конденсации на подложку комнатной температуры в зоне контакта металлов образуется соединение Cu_6Sn_5 , разделяющее слои меди и олова. Получить чистые интерфейсы медь-олово удастся лишь при конденсации образцов на подложки, поддерживаемые при температуре жидкого азота. Поэтому в наших образцах непосредственно после осаждения оставшееся свободное олово находится в контакте не с медью, а с Cu_6Sn_5 . Однако, согласно [14], отжиг образцов при температуре 150 °С вызывает постепенный распад Cu_6Sn_5 с высвобождением свободного олова и образованием Cu_3Sn . По-видимому, особенность, обнаруживаемая в первых

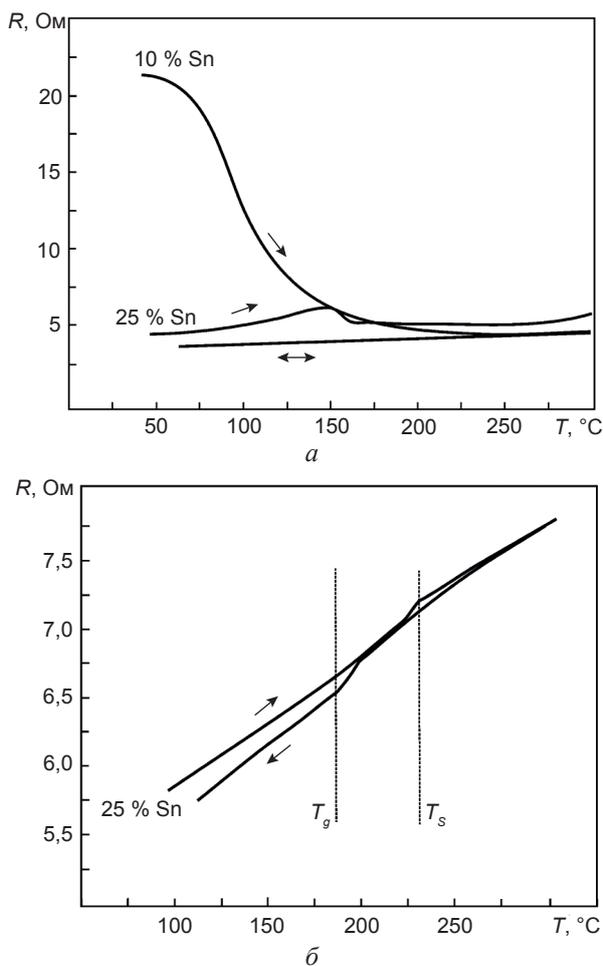


Рис. 7. Температурная зависимость сопротивления пленок Cu-Sn в первом (а) и четвертом (б) циклах нагрева

циклах нагрева образцов, содержащих 25 % Sn, обусловлена указанным процессом. Так, согласно [15], при этой температуре при первом нагреве образцов, содержащих Cu_6Sn_5 , на температурной зависимости температурного коэффициента расширения имеется протяженная особенность, которая, наряду с разницей в удельных сопротивлениях Cu_6Sn_5 , Cu_3Sn и чистых компонент, может объяснить изменение электросопротивления, наблюдаемое в наших экспериментах. Появление в последующих циклах нагрева-охлаждения на температурных зависимостях электросопротивления скачков, идентифицирующих плавление и кристаллизацию олова, вероятно, можно связать с высвобождением достаточного для регистрации количества олова, которое находится в контакте как с Cu_3Sn , так и с медью. Однако, поскольку согласно [16] вследствие конкуренции между Cu_3Sn и Cu_6Sn_5 на границе контакта жидкого олова с медью снова происходит образование интерметаллида Cu_6Sn_5 , которое занимает заведомо меньшее время, чем охлаждение образца до температуры кристаллизации [17], также в контакте с переохлажденным оловом будет находиться вновь возникшее после распада соединения Cu_6Sn_5 . Таким образом, наблюдаемое в многослойных пленочных системах Cu-Sn переохлаждение легкоплавкого компонента соответствует олову, находящемуся в контакте как с медью, так и с интерметаллическими соединениями.

ВЫВОДЫ

При помощи исследования зависимости сопротивления от температуры в циклах нагрева-охлаждения определены величины переохлаждения при кристаллизации легкоплавкого компонента в пленках Mo-In, Mo-Sn, Cu-In, Cu-Sn.

Установлено, что обнаруженная величина переохлаждения в пленках Cu-In и Cu-Sn соответствует переохлаждению легкоплавкого компонента, находящегося в контакте не только с медью, но и с различными химическими соединениями.

Показано, что, несмотря на то, что метод регистрации электросопротивления может быть использован для *in situ* регистрации переохлаждения в системах с различным

типом фазовых диаграмм, он оказывается наиболее перспективным для контактных пар с простым характером взаимодействия компонент.

REFERENCES

- Hollomon J. H., Turnbull D. Nucleation // *Progress in Metal Physics*. — 1953. — Vol. 4. — P. 333–388.
- Gladkikh N. T., Dukarov S. V., Kryshal O. P., Larin V. I., Sukhov V. N., Bogatyrenko S. I., Poverkhnostnye yavleniya i fazovye prevrashcheniya v kondensirovannykh plenkach (Surface Phenomena and Phase Transformations in Condensed Films). — Kharkiv: V. N. Karazin Kharkiv National University, 2004.
- Gladkikh N. T., Dukarov S. V., Sukhov V. N., Churilov I. G. Condensation mechanism of AgCl and NaCl island films on a nickel substrate // *Functional Materials*. — 2001. — Vol. 18, No. 4. — P. 529–533.
- Gladkikh N. T., Dukarov S. V., Sukhov V. N. Supercooling during metal crystallization under conditions close to weightlessness using island vacuum condensates // *Zeitschrift fuer Metallkunde*. — 1996. — Vol. 87. — P. 233–239.
- Gladkikh N. T., Dukarov S. V., Sukhov V. N. Overcooling on metal crystallization in island-like vacuum deposited films // *Fizika Metallov i Metallovedenie*. — 1994. — Vol. 78, No. 3. — P. 87–93.
- Petrushenko S. I., Dukarov S. V., Sukhov V. N. Formation and thermal stability of liquid phase in layered film systems // *Vacuum*. — 2015. — Vol. 122, No. A. — P. 208–214.
- Petrushenko S. I., Dukarov S. V., Sukhov V. N. Supercooling during crystallization of fusible metal particles in multilayer «carbon-metal-carbon» films // *Problems of atomic science and technology*. — 2016. — Vol. 4, No. 104. — P. 118–124.
- Bogatyrenko S. I., Voznyj A. V., Gladkikh N. T., Kryshal A. P. Supercooling upon crystallization in layered Al/Bi/Al film system // *Fizika Metallov i Metallovedenie*. — 2004. — Vol. 97, No. 3. — P. 273–281.
- Minenkov A. A., Bogatyrenko S. I., Sukhov R. V., Kryshal A. P. Size dependence of the activation energy of diffusion in multilayer

- Cu-Ni films // *Physics of the Solid State*. — 2014. — Vol. 56, No. 4. — P. 790–793.
10. Bogatyrenko S. I., Gladkikh N. T., Krysh-tal' A. P., Samsonik A. L., Sukhov V. N. Dif-fusion in nanodisperse layered film systems // *Physics of Metals and Metallography*. — 2010. — Vol. 109, No. 3. — P. 276–283.
 11. Thomas Studnitzky, Rainer Schmid-Fetzer. Phase formation and reaction kinetics in M-Sn systems (M = Zr, Hf, Nb, Ta, Mo) // *Zeitschrift für Metallkunde*. — 2002. — Vol. 93, No. 9. — P. 894–903.
 12. Leo Brewer, Lamoreaux R. H. The Mo-SN (Molybdenum-Tin) system // *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*. — 1980. — Vol. 1, No. 2. — P. 96–97.
 13. Lyakishev N. P. (ed.). *Diagrammy sostoyaniya dvoynykh metallicheskih sistem: spravochnik* (Phase diagrams of binary metallic systems: a handbook). — Moscow: Mashinostroenie, 1996.
 14. Tu K. N., Thompson R. D. Kinetics of interfacial reaction in bimetallic Cu-Sn thin films // *Acta Metallurgica*. — 1982. — Vol. 30, No. 5. — P. 947–952.
 15. Mu D., Read J., Yang Y. F., Nogita K. Thermal expansion of Cu_6Sn_5 and $(\text{Cu, Ni})_6\text{Sn}_5$ // *Journal of Materials Research*. — 2011. — Vol. 26, No. 20. — P. 2660–2664.
 16. Mua D. K., McDonaldb S. D., Readb J., Hu-ang H., Nogita K. Critical properties of Cu_6Sn_5 in electronic devices: Recent progress and a review // *Current Opinion in Solid State and Materials Science*. — 2016. — Vol. 20, No. 2. — P. 55–76.
 17. Lord R., Umantsev A. Early stages of soldering reactions // *Journal of Applied Physics*. — 2005. — Vol. 98, No. 6. — P. 063525–063525-11.