

Fe 粉对 Sn-3Ag-0.5Cu 复合钎料组织及性能的影响

刘晓英, 马海涛, 罗忠兵, 赵艳辉, 黄明亮, 王 来

(大连理工大学 材料科学与工程学院, 大连 116085)

摘 要: 通过在钎料中添加 Fe 粉颗粒, 研究其对 Sn-3Ag-0.5Cu 复合无铅钎料的黏度、熔点、钎焊接头界面微观组织、与 Cu 基板之间的润湿性及焊点力学性能的影响。结果表明: 微米级 Fe 粉的添加增加了复合钎料焊膏单位体积内焊粉的接触面积, 使得焊膏内摩擦力增大, 导致复合钎料焊膏的黏度增加; 微米级 Fe 粉的添加对 Sn-3Ag-0.5Cu 钎料的熔化特性没有显著影响; 钎焊时, 由于重力偏聚及界面吸附作用, Fe 粉颗粒集中沉积于 Sn-3Ag-0.5Cu-Fe/Cu 钎焊接头界面处靠近钎料一侧, 由于增大液态钎料黏度而导致钎料与 Cu 板间的润湿性降低; 与 Sn-3Ag-0.5Cu/Cu 相比, Sn-3Ag-0.5Cu-Fe/Cu 界面处钎料一侧粗大的 β -Sn 枝晶区消失, 取而代之的是细小的等轴晶。Sn-3Ag-0.5Cu-1%Fe/Cu 的剪切强度为 46 MPa, 比 Sn-3Ag-0.5Cu/Cu 剪切强度提高 39%; 靠近界面金属间化合物处钎料基体的显微硬度提高约 25%。

关键词: 复合无铅钎料; Sn-3Ag-0.5Cu; 黏度; 润湿性; 剪切强度

中图分类号: TG425

文献标志码: A

Effect of Fe particles on microstructures and properties of Sn-3Ag-0.5Cu lead-free solder

LIU Xiao-ying, MA Hai-tao, LUO Zhong-bing, ZHAO Yan-hui, HUANG Ming-liang, WANG Lai

(Dalian University of Technology, School of Materials Science and Engineering, Dalian 116085, China)

Abstract: The effects of Fe particles on the viscosity, melting point, microstructure, wettability and mechanical properties of Sn-3Ag-0.5Cu solder paste were investigated. The results show that the addition of Fe particles with micro size increases the contact area between the solder balls and friction force of solder pastes, which is due to the increasing viscosity of solder paste. The density of Fe is higher than that of the Sn-3Ag-0.5Cu, and Fe particles are adsorbed to the interface to increase the viscosity of liquid solder, so, the wettability of solder alloys are degraded. Compared with the Sn-3Ag-0.5Cu/Cu, the fine equiax crystal in Sn-3Ag-0.5Cu-Fe/Cu is found instead of the bulky β -Sn arborescent crystal. The shear strength of the Sn-3Ag-0.5Cu-1%Fe/Cu is 46 MPa, which is 39% higher than that of the Sn-3Ag-0.5Cu/Cu. The microhardness of the matrix increases approximately 25% as a result of incorporation of Fe particles.

Key words: composite lead-free solder; Sn-3Ag-0.5Cu; viscosity; wettability; shear strength

为进一步开发新型无铅钎料和改善现有无铅钎料性能, 复合无铅钎料的研究已成为电子封装领域的热点。一般而言, 复合钎料中应用的增强颗粒可以分为两类: 一种是金属间化合物颗粒, 这些金属间化合物颗粒有的直接添加(如 Cu_6Sn_5 、 Cu_3Sn 或 Ni_3Sn_4 ^[1-2]); 有的是在钎料中添加外来金属颗粒(如 Cu ^[3]、Ni 或

Ag), 通过在时效或钎焊过程中与 Sn 反应原位生成金属间化合物颗粒^[4-6]。另外一种增强颗粒是在 Sn 中有较低的溶解度和扩散率, 包括 SiC ^[7]颗粒、笼型硅氧烷齐聚物(POSS)颗粒^[8]或者氧化物颗粒(如 Al_2O_3 或 TiO_2 ^[9])等。研究指出, 少量增强颗粒的添加可以有效改善 Sn 基钎料的力学性能。增强颗粒的恰当选择,

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(U0734006, 51171036); 辽宁省自然科学基金资助项目(2009921058); 中央高校基本科研业务费专项资金资助项目(DUT11RC(3)30)

收稿日期: 2010-05-20; **修订日期:** 2011-12-20

通信作者: 王 来, 教授; 电话: 86-411-84707636; E-mail: wangl@dlut.edu.cn

可以使复合钎料组织更加均匀;同时增强颗粒可以作为晶界滑移、裂纹形成及扩展的阻碍,以提高钎料基体的蠕变和疲劳抗力^[10]。从已有的研究工作看,大多数研究者均着眼于开发新型复合钎料制备方法以使得增强颗粒均匀弥散分布^[11-13]。但总体上颗粒增强复合钎料在实际工业应用中仍较少,仍处于研究探索阶段。

WANG等^[14]和LAURILA等^[15]研究在钎料熔炼过程中添加Fe组分以制备钎料合金,认为在液态钎料中添加少量Fe能促进 Cu_6Sn_5 的非均匀形核,这将对Sn基钎料/Cu基板界面处金属间化合物的形成及生长产生重要影响。但以单质Fe粉增强并采用机械搅拌方法将基体钎料粉体、增强颗粒单质Fe粉、助焊剂均匀混合直接制备成复合钎料焊膏的研究与应用尚未见报道。采用机械搅拌方式添加Fe粉具有成本低、工艺简单、可制备成焊膏使用等特点。

本文作者选择微米级Fe粉为增强体颗粒、以Sn-3Ag-0.5Cu为钎料主体成分,并将其复合制备成Sn-3Ag-0.5Cu-Fe焊膏,旨在研究Fe颗粒对Sn-3Ag-0.5Cu复合钎料黏度、熔点、润湿性、其钎焊接头组织及力学性能的影响,并对有关影响机制进行探讨。

1 实验

选用Sn-3Ag-0.5Cu(30~45 μm)为基体金属粉体(以下简称SAC),增强颗粒为Fe粉(1~2 μm)。首先将一定质量Fe粉加入中性活性松香钎剂中充分搅拌,再加入称量好的SAC钎料,在自制的搅拌机上搅拌均匀后制成焊膏(钎剂和复合钎料的质量比是1:8,添加Fe粉的质量分数分别是0.5%、1%,分别记为SAC-0.5Fe、SAC-1Fe)。用同轴圆筒上旋式黏度计测量焊膏黏度,用差示扫描量热计(DSC)测量钎料熔点。

通过模版印刷的方式将 $d\ 5\ \text{mm}\times 1.5\ \text{mm}$ 焊膏置于Cu箔上(99.99%),放入TYR108N-C型再流焊炉中在250 $^{\circ}\text{C}$ 分别钎焊30 s, 1 min, 2 min, 5 min和10 min,钎焊温度曲线如图1所示。应用光学显微镜和图像分析仪测量钎焊后铺展面积。钎料/Cu箔纵截面分别经镶嵌、打磨、抛光后,用5% HNO_3 -2% HCl -93%甲醇溶液腐蚀,然后分别利用光学显微镜(OM)和扫描电镜(SEM)观察钎料焊点铺展面积和润湿角,电子探针(EPMA)进行成分分析,数显小负荷维氏硬度计HVS-5测量焊点显微硬度。钎焊接头剪切性能在SHIMDZU液压伺服万能试验机上测定。

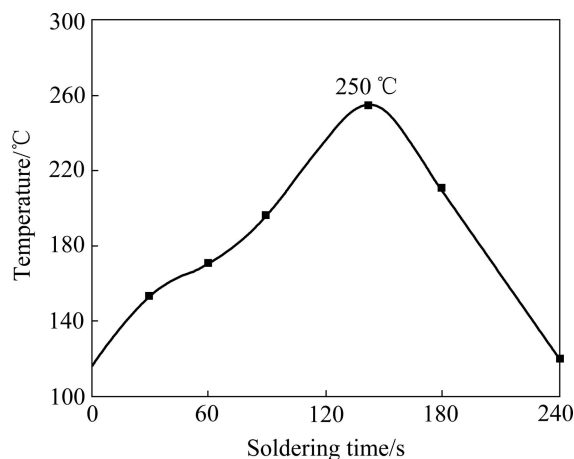


图1 冷却速度约为4 K/s时再流焊温度曲线示意图

Fig. 1 Temperature profile for solder bump during reflow at cooling rate of about 4 K/s

2 结果与讨论

2.1 复合钎料的黏度

图2所示为焊膏在不同剪切速率下的黏度曲线。每组数据进行5次实验,取其平均值而获得。随着剪切速率增大,焊膏黏度逐渐降低。由图2可以看出,SAC-0.5Fe、SAC-1Fe焊膏的黏度均大于SAC的,添加0.5%Fe(质量分数)后,焊膏的黏度比SAC的提高约5%;添加1%Fe粉后,焊膏黏度比SAC的提高约8%。

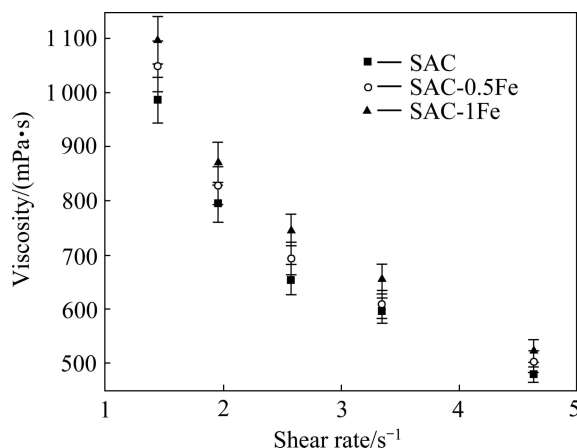


图2 焊膏黏度与剪切速率之间对应关系

Fig. 2 Relationship between viscosity of solder paste and shear rate

由图2可知,随着剪切速率增大,焊膏黏度降低,这是由于在搅拌过程中,钎料颗粒与颗粒间及颗粒与转子间存在摩擦力而产生一定热量,使得钎剂活性增加,流动性增强而导致黏度值降低。

流动阻力是黏性流体中动量传递研究的基本问题之一。它与流体流动的方向相反, 由动量传递而产生。绕球体作层流流动时, 阻力可根据斯托克斯定律(1851 年英国斯托克斯关于颗粒在流体中运动阻力)计算, 即

$$f=3\pi\mu du \quad (1)$$

式中: f 为摩擦阻力, μ 为中性活性松香黏度, d 为球的直径, u 为来流速度。对于焊膏整体摩擦阻力

$$F = nf \frac{m_1}{\rho_1 \left(\frac{d_1}{2} \right)} 3\mu u + \frac{m_2}{\rho_2 \left(\frac{d_2}{2} \right)} 3\mu u \quad (2)$$

式中: F 为总摩擦阻力, m_1 为 Sn-3Ag-0.5Cu 质量, m_2 为 Fe 粉质量; ρ_1 为 Sn-3Ag-0.5Cu 密度, ρ_2 为 Fe 粉密度; d_1 为 Sn-3Ag-0.5Cu 颗粒直径, d_2 为 Fe 粉颗粒直径。可见复合钎料总摩擦力主要受钎料粉体颗粒直径影响。所以, 当微小粒度 Fe 粉添加至 SAC 钎料中可提高钎料与钎剂之间的摩擦阻力, 这将导致复合钎料焊膏黏度的增加。

2.2 Fe 粉对复合钎料熔点的影响

在微电子封装工业中, 熔点是开发新钎料的首要因素。如今大部分电子封装装备的设计工作温度均以 Sn-Pb 共晶温度 456 K 作为基本参考温度。如果复合钎料设计温度较高, 则需要更新封装装备, 将导致生产成本的提高。所以, 研制开发复合无铅钎料的一个重要指标就是添加物不会引起钎料熔点的显著提高。

图 3 所示为钎料合金的 DSC 曲线。由图 3 可知, SAC、SAC-0.5Fe 和 SAC-1Fe 的熔点分别为 217.1、216.4 和 217.8 °C。Fe 粉对 SAC 无铅钎料的熔点没有明显的影响。SAC-0.5Fe 合金的曲线上出现了两个吸热峰, 一个 Onset 值对应 216.4 °C, 另一个 Onset 值对应 517.7 °C。对于第一个峰, 应当对应共晶转变 $\beta\text{-Sn} + \text{Cu}_6\text{Sn}_5 + \text{Ag}_3\text{Sn} \rightarrow L$, 而后一个峰则对应 $\beta\text{-Sn} + \text{Fe} \rightarrow \text{FeSn}_2$ 反应。SAC-1Fe 合金 DSC 曲线与 SAC-0.5Fe 相似, 吸热峰值相差不大。

关于添加增强颗粒或纤维对钎料熔点影响的研究结论都不够明确。LIU 等^[16]研究过添加 SiC 纳米颗粒会导致 Sn-3.8Ag-0.7Cu 熔点降低约 1 K。分析认为, 熔点的降低可能是因为添加的 SiC 有较高的表面自由能。而 SHEN 等^[17]曾用高精度 DSC 设备研究过 Sn-3.5Ag-ZrO₂ 复合钎料的熔化和凝固温度。测试结果表明, Sn-Ag 熔点并没有受 ZrO₂ 添加的影响。合金的熔点是其固有的一种物理现象。林德曼标准^[18]中曾说一种晶体当其晶体原子间距的均方根超过原子自身大小一定比例后晶体将会熔化。SAC 钎料粉体为固态时

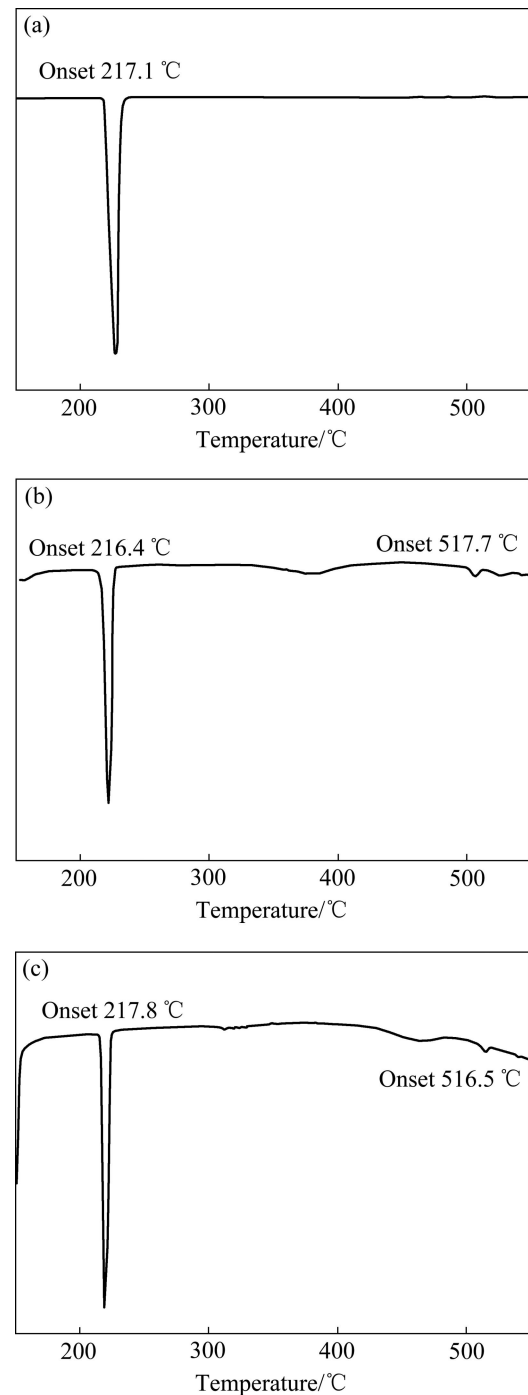


图 3 3 种钎料的 DSC 曲线

Fig. 3 DSC profiles of three solders: (a) Sn-3Ag-0.5Cu; (b) Sn-3Ag-0.5Cu-0.5Fe; (c) Sn-3Ag-0.5Cu-1Fe

与 Fe 粒子并没发生任何化学反应, 即 Fe 并没有改变 SAC 钎料的成分及晶体结构, 当 SAC 钎料为液态时才与 Fe 反应生成 FeSn₂ 相, 所以 Fe 对 SAC 熔点并没有影响。

2.3 SAC-Fe/Cu 钎焊接头组织

图 4(a)所示为 SAC-1Fe 钎焊 2 min 后接头的 SEM

像。图中箭头所指深色粒子经 EPMA(见图 4(b))确定为 Fe 颗粒, 上下均为 Cu 基板。由图可观察到 Fe 颗粒主要偏聚于近界面处, 而以下界面处较多。Fe 颗粒表面包裹一层浅色物质(见图 4(b)), 经 EPMA 分析确定为 FeSn_2 相。这是由于钎焊过程中 Fe 与液态 Sn 发生反应, 生成新的合金相。KIM 等^[19]也证实钎料中添加少量 Fe 只能生成 FeSn_2 相。钎焊时间为 1 min 时, 生成的 FeSn_2 相厚度约为几百纳米。当钎焊时间延长至 10 min 时, FeSn_2 相厚度约为 1 μm 。Fe 与 Sn 之间结合较好。

根据 Gibbs 吸附公式^[20]:

$$\Gamma = -\frac{x}{RT} \left(\frac{d\sigma}{dx} \right)_T \quad (3)$$

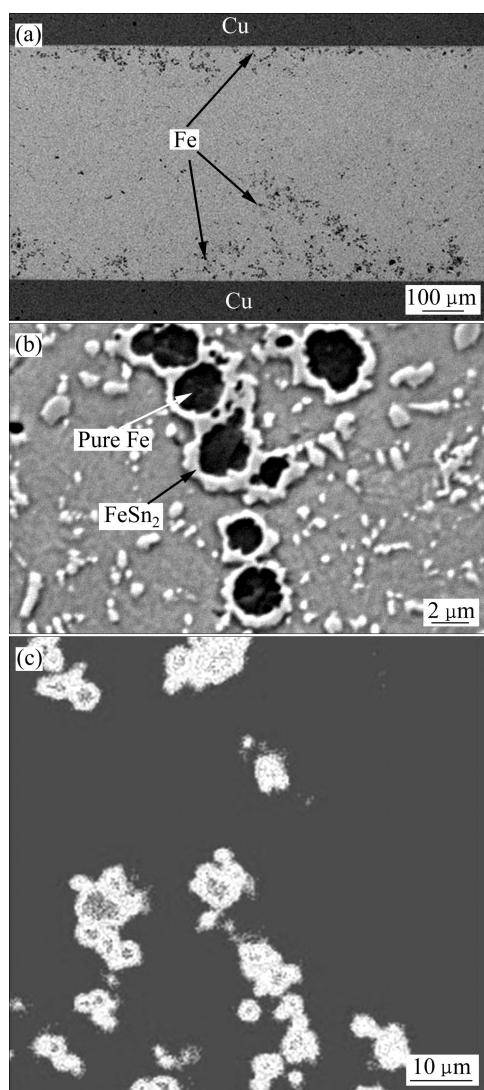


图 4 SAC-1Fe 钎焊 2 min 后接头的 EPMA 像

Fig. 4 EPMA images of SAC-1Fe reflowed for 2 min: (a) Low magnification SEM image; (b) High magnification SEM image; (c) EPMA image

式中: Γ 表示单位界面面积上溶质在表面和整体的浓度之差, x 是摩尔分数, R 是摩尔气体常数, T 是绝对温度, $(d\sigma/dx)_T$ 表示一定温度下表面张力随溶液浓度的改变。溶液中溶入的溶质如能降低面际表面能, 则溶质在面际的浓度要高于溶液内部的浓度, 呈现出溶液的表面吸附现象。由于固/液之间的界面能较大, 所以 Fe 易于偏聚于上下界面处, 以降低 SAC-Fe/Cu 界面处界面能。由于 Fe 粉的密度 (7.86 g/cm^3) 大于 SAC 的 (7.4 g/cm^3), 所以 Fe 颗粒大部分偏聚于下界面处。

图 5 所示为钎焊 2 min 后, SAC/Cu 和 SAC-1Fe/Cu 靠近界面区域微观组织结构及其形貌背散射电子像。由 5(a)可以看出, 沿垂直 IMC(Cu_6Sn_5)界面方向择优生长而形成的 β -Sn 柱状晶。而在图 5(b)中并不存在较大的 β -Sn 柱状晶, 取而代之均为晶粒较小的等轴晶。且可明显观察到靠近界面处存在 Fe 粒子的偏聚。这是由于钎焊冷却过程中, 靠近 Cu 板方向首先降温, 此时, 液态钎料产生较大的过冷度而大量形核, 这些 β -Sn 晶核又在 Cu 板较强的散热条件下迅速长大并互相接触, 从而形成大量无规则排列的细小等轴晶粒。此时, 处于凝固界面前沿的晶粒原来的各向同性生长条件被破坏, 转而在垂直于 Cu 板的单向热流作用下, 以枝晶方式沿热流的反相延伸生长。那些主干与热流方向平行的枝晶获得了更为有利的生长条件, 优先向液体

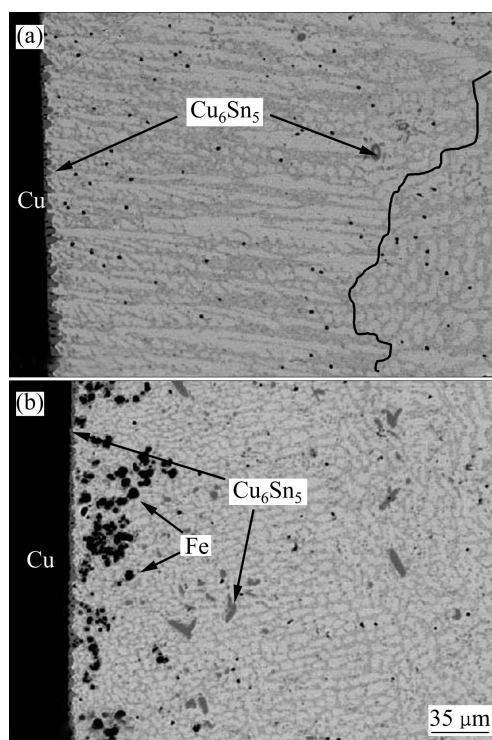


图 5 钎焊 2 min 后接头的 BEI 像

Fig. 5 BEI images of samples reflowed for 2 min: (a) SAC/Cu; (b) SAC-1Fe/Cu

内部延伸生长并抑制了其他方向枝晶的生长, 逐渐发展成为柱状晶^[21]。添加 Fe 粒子后粗大的柱状晶消失, 取而代之的是细小晶粒。这是因为 Fe 粒子的添加, 促进了钎料合金的非均匀形核而细化 β -Sn 晶粒。同时在垂直 Cu 板方向上晶粒以枝晶方式生长受到 Fe 颗粒抑制而变为各向同性等轴晶生长。

2.4 钎料润湿性

众所周知, 在钎料的各项性能中润湿性非常重要。润湿是指由固-液相界面取代固-气相界面, 从而使体系的自由能降低的过程。钎料的润湿性可以从其焊点的铺展面积和润湿角两个方面来进行检测和研究。将焊膏/Cu 基板放入再流焊炉中钎焊不同时间, 每种成分任取 10 个焊点进行铺展面积及润湿角的测量, 然后取平均值。

经测量得到焊膏在 Cu 基板上铺展面积数据如图 6 所示。由图 6 可知, SAC/Cu 钎焊 10 min 后铺展面积为 44.8 mm², 而 SAC-0.5Fe/Cu 平均铺展面积为 37.7 mm², 与 SAC 相比降低 16%。SAC-1Fe/Cu 平均铺展面积为 34.1 mm², 与 SAC 相比降低 23%。随着钎焊时间延长, 焊点铺展面积增加。2 min 之前, 铺展面积增加较快, 这表明液态钎料未达到稳定状态。2 min 后, 铺展面积增加较慢, 趋于平缓, 此时液态钎料与 Cu 基板润湿铺展逐渐达到平衡。钎料钎焊 10 min 后润湿角如表 1 所列。当颗粒数量较多时, 由于钎料内

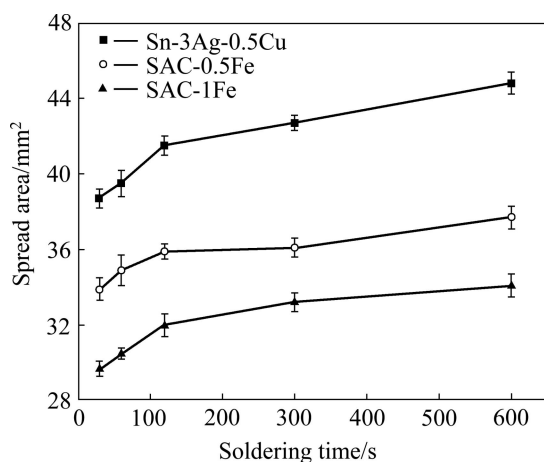


图 6 钎焊不同时间后焊点的铺展面积

Fig. 6 Spread area of solder reflowed for different times

表 1 钎焊 10 min 后焊点的润湿角

Table 1 Wetting angles of solders after reflowing for 10 min

Sample	SAC	SAC-0.5Fe	SAC-1Fe
Wetting angle/(°)	26.5±1	28.5±0.8	33.7±1

部钉扎的粒子通过增加液态钎料黏度而抑制液态钎料铺展, 所以当大量 Fe 粒子沉积于界面处时则会降低钎料合金的润湿性, 这与 SHEN 和 CHEN^[22]的结论相吻合。

2.5 钎焊接头的剪切强度

采用双 Cu 板搭接制备钎焊接头的剪切样品^[23]。首先将双 Cu 板搭接(铜板之间填充钎料)的剪切样品放入回流焊炉中焊接 4 min 后取出空冷, 冷却速度约为 4 K/s, 剪切应变速率为 $\dot{\epsilon}=9 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, 剪切强度曲线如图 7 所示。SAC-0.5Fe/Cu 的剪切强度为 39 MPa, 比 SAC/Cu 的剪切强度 33 MPa 提高了 18%。SAC-1Fe/Cu 的剪切强度为 46 MPa, 比 SAC/Cu 剪切强度提高了 39%。

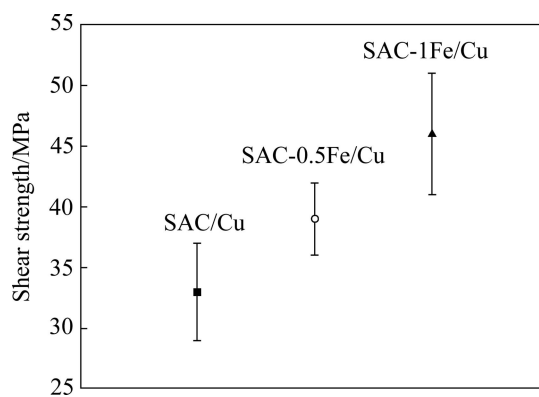


图 7 钎料合金的剪切强度

Fig. 7 Shear strength of solders

剪切断面形貌如图 8 所示, 图 9 所示为接头断面照片。剪切拉伸试验的断面分析结果表明: SAC/Cu、SAC-0.5Fe/Cu 与 SAC-1Fe/Cu 断口的断裂形式均为韧性断裂; SAC/Cu 断口的断裂位置大多位于钎料基体中; SAC-0.5Fe/Cu 与 SAC-1Fe/Cu 断口的断裂位置, 在同一断口上有些部位位于钎焊接头界面, 有些部位位于钎料基体中。说明 SAC-0.5Fe、SAC-1Fe 基体强度均高于 SAC 钎料的; 原因是 Fe 颗粒的存在细化钎料基体 β -Sn 晶粒, 增加晶粒数目及晶界面积而提高钎料的强度。图 8(a)所示为 SAC/Cu 的断面照片, 断面位于钎料基体中; 图 8(b)、图 8(c)所示分别为 SAC-0.5Fe/Cu、SAC-1Fe/Cu 的断面, EDS 分析结果(见图 10)表明剪切断面表层主要物质成分为 Sn 和 Cu₆Sn₅, 而没有发现 Fe 颗粒的存在, 说明断口的断裂面正好位于钎焊接头界面处。图 9 所示为接头断面断裂面照片, 因此, 也进一步证实 SAC-0.5Fe/Cu、SAC-1Fe/Cu 断口的断裂位置, 在同一断口上有些部位位于钎焊接头界面、有些部位位于钎料基体中。Fe 粉

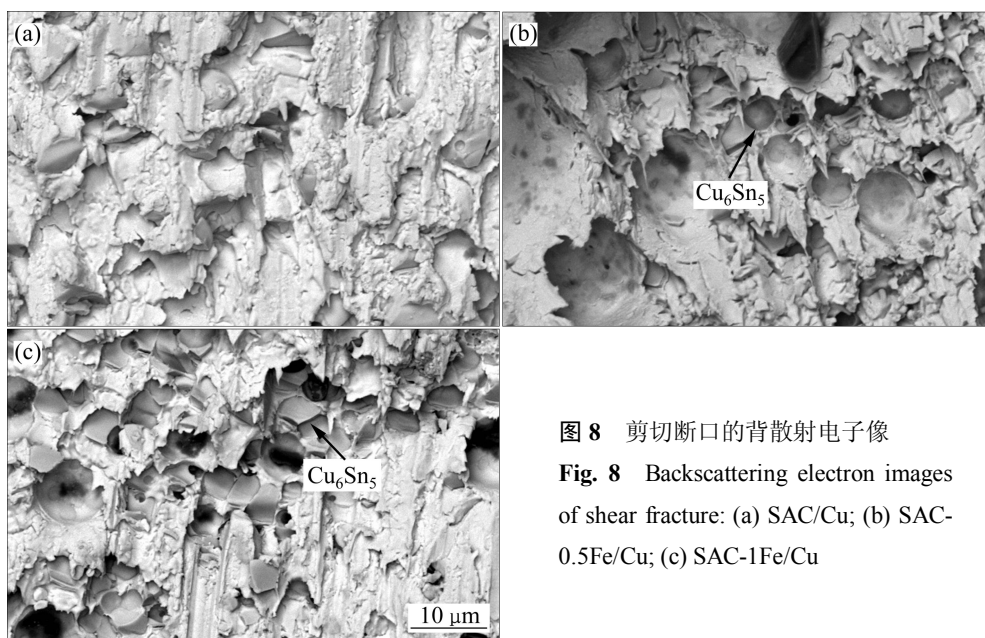


图8 剪切断口的背散射电子像

Fig. 8 Backscattering electron images of shear fracture: (a) SAC/Cu; (b) SAC-0.5Fe/Cu; (c) SAC-1Fe/Cu

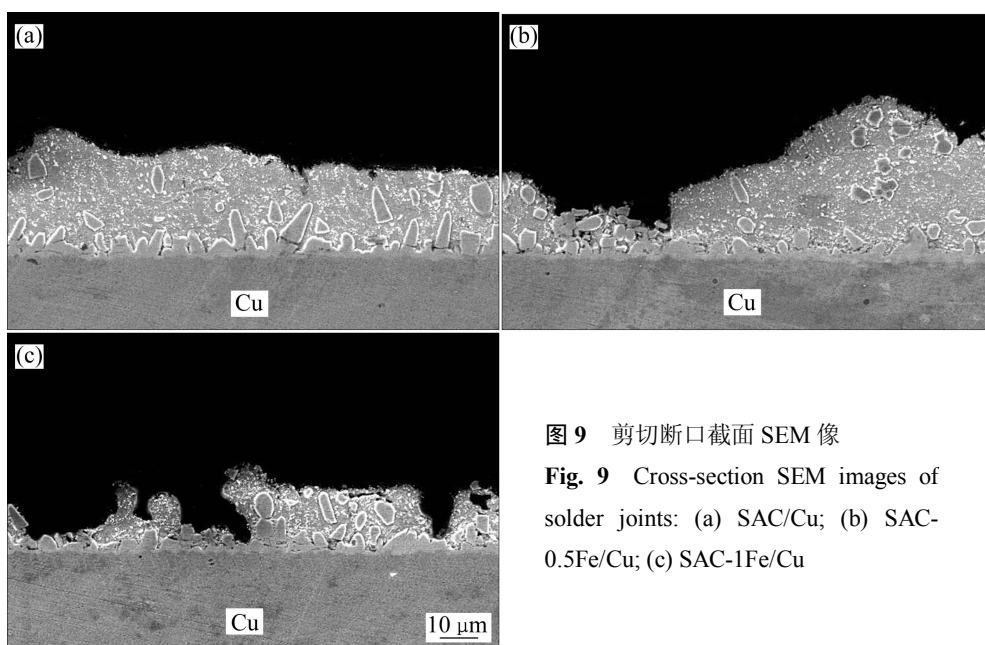


图9 剪切断面 SEM 像

Fig. 9 Cross-section SEM images of solder joints: (a) SAC/Cu; (b) SAC-0.5Fe/Cu; (c) SAC-1Fe/Cu

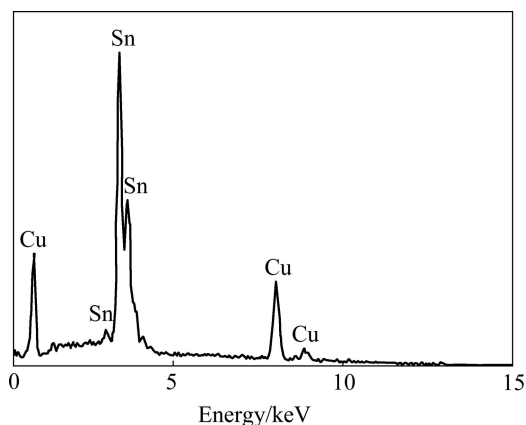


图10 SAC-Fe/Cu 断口的 EDS 谱

Fig. 10 EDS patterns of SAC-Fe/Cu fracture

增强的 Sn-3Ag-0.5Cu 复合无铅钎料的强化机制主要是 β -Sn 的细晶强化作用^[7, 24]。

2.6 钎料的显微硬度

图 11 所示为 Fe 粉增强 Sn-3Ag-0.5Cu 复合钎料钎焊不同时间后靠近 IMC 界面处的显微硬度曲线。Sn-Ag-Cu 钎料显微硬度约为 12 HV，而 SAC-1Fe 显微硬度约为 15 HV。复合钎料的显微硬度随 Fe 颗粒数量的增加而增大。Fe 由于密度较大及界面吸附作用而偏聚于 IMC 界面处，且 Fe 可以通过异质形核作用细化 β -Sn 晶粒尺寸，所以，界面处合金强度的显微硬度有所提高。

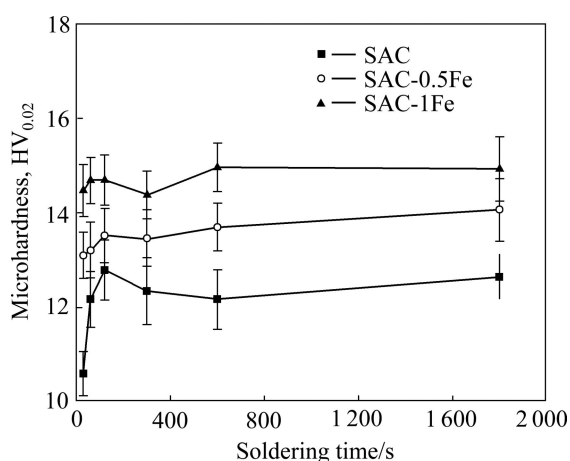


图11 钎料合金的显微硬度

Fig. 11 Microhardness of solder joints

3 结论

1) 微米级 Fe 粉的添加增大钎料粉体与钎剂之间的摩擦力, 导致复合钎料焊膏黏度增加。

2) Fe 粉颗粒的添加对 SAC 钎料的熔化特性没有显著影响。

3) 由于 Fe 粉颗粒相对密度比 Sn-3Ag-0.5Cu 粉颗粒相对密度大, 且存在重力偏聚及界面吸附作用, 所以 Fe 粉颗粒集中沉积于 SAC-Fe/Cu 钎焊接头界面靠近钎料一侧, 由于增加液态钎料黏度而导致钎料与 Cu 基板间钎料润湿性有所降低; Fe 粉的添加促进钎焊时钎料合金的异质形核和细化 β -Sn 晶粒。

4) 与 SAC/Cu 接头相比, SAC-Fe/Cu 钎焊接头剪切强度明显提高。但 3 种钎料接头断裂形式均为塑性断裂。

5) SAC-1Fe/Cu 接头界面处合金显微硬度提高约 25%。

REFERENCES

[1] MARSHALL J L, CALDERON J. Hard-particle reinforced composite solders[J]. Soldering & Surface Mount Technology, 1997, 9(2): 22-28.

[2] CLOUGH R B, PETEL R, HWANG J S, LUCEY G. Preparation and properties of reflowed paste and bulk composite solder[C]//Proceedings of Technical Program-Nepcon West Conference, Anaheim, CA: Cahnners Exhibition Group, Des Plains, IL, 1992, 3: 1256-1258.

[3] 黄惠珍, 廖福平, 魏秀琴, 周浪. 添加铜对 Sn-9Zn 无铅钎料性能的影响[J]. 焊接学报, 2009, 30(6): 30-33, 38.

HUANG Hui-zhen, LIAO Fu-ping, WEI Xiu-qin, ZHOU Lang. Effect of Cu addition on Sn-9Zn lead-free solder properties[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2009, 30(6): 30-33, 38.

[4] WANG Y W, LIN Y W, TU C T, KAO C R. Effect of minor Fe, Co, and Ni additions on the reaction between SnAgCu solder and Cu[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2009, 478(1/2): 121-127.

[5] 刘建萍, 阎焉服, 郭福, 赵玉珍, 史耀武. 纳米银颗粒增强复合钎料的研究[J]. 焊接学报, 2004, 33(4): 38-40.

LIU Jian-ping, YAN Yan-fu, GUO Fu, ZHAO Yu-zhen, SHI Yao-wu. The investigation of nano-silver reinforced composite solders[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2004, 33(4): 38-40.

[6] 谢海平, 于大全, 马海涛, 王来. Sn-Zn-Cu 无铅钎料的组织、润湿性和力学性能[J]. 中国有色金属学报, 2004, 14(10): 1694-1699.

XIE Hai-ping, YU Da-quan, MA Hai-tao, WANG Lai. Microstructure, wettability and mechanical properties of Sn-Zn-Cu lead free solder[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2004, 14(10): 1694-1699.

[7] WANG X, LIU Y C, WEI C, GAO H X, JIANG P, YU L M. Strengthening mechanism of SiC-particulate reinforced Sn-3.7Ag-0.9Zn lead-free solder[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2009, 480(1/2): 662-665.

[8] 张睿站, 徐广臣, 邵风, 郭福, 夏志东, 雷永平. 具有纳米结构的增强颗粒对 SnBi 焊点电迁移的影响[J]. 稀有金属材料与工程, 2011, 40(2): 45-50.

ZHANG Rui-hong, XU Guang-chen, TAI Feng, GUO Fu, XIA Zhi-dong, LEI Yong-ping. Effects of nano-structured reinforcements on the electromigration behavior of SnBi solder joints[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2011, 40(2): 45-50.

[9] MAVOORI H, JIN S. New, creep-resistant, low melting point solders with ultrafine oxide dispersions[J]. Journal of Electronic Materials, 1998, 27(11): 1216-1222.

[10] BETRABET H S, MCGEE S M, MCKINLAY J K. Processing dispersion-strengthened Sn-Pb solders to achieve microstructural refinement and stability[J]. Scripta Metallurgica et Materialia, 1991, 25(10): 2323-2328.

[11] SASTRY S M L, PENG T C, LEDERECH R J, JERINA K L, KUO C G. Microstructures and mechanical properties of in-situ composite solders[C]//Proceedings of Technical Program-Nepcon West Conference, Anaheim, CA: Cahnners Exhibition Group, Des Plains, IL, 1992: 1266-1275.

[12] HWANG S Y, LEE J W, LEE Z H. Microstructure of a lead-free composite solder produced by an in-situ process[J]. Journal of Electronic Materials, 2002, 31(11): 1304-1308.

[13] SHEN J, LIU Y C, GAO H X. In situ nanoparticulate-reinforced lead-free Sn-Ag composite prepared by rapid solidification[J]. J

- Mater Sci Mater Electron, 2007, 18(4): 463–468.
- [14] WANG Y W, LIN Y W, TU C T, KAO C R. Effects of minor Fe, Co, and Ni additions on the reaction between SnAgCu solder and Cu[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2009, 478(1/2): 121–127.
- [15] LAURILA T, HURTIG J, VUORINEN V, KIVILAHTI J K. Effect of Ag, Fe, Au and Ni on the growth kinetics of Sn-Cu intermetallic compound layers[J]. Microelectronics Reliability, 2009, 49(3): 242–247.
- [16] LIU P, YAO P, LIU J. Effect of SiC nanoparticle additions on microstructure and microhardness of Sn-Ag-Cu solder alloy[J]. Journal of Electronic Materials, 2008, 37(6): 874–879.
- [17] SHEN J, LIU Y C, HAN Y J, TIAN Y M, GAO H X. Strengthening effects of ZrO_2 nanoparticles on the microstructure and microhardness of Sn-3.5Ag lead-free solder[J]. Journal of Electronic Materials, 2006, 35(8): 1672–1679.
- [18] LINDEMANN F. Über die Berechnung molekularer Eigenfrequenzen[J]. Phys Z, 1910, 11: 609–612.
- [19] KIM K S, HUH S H, SUGANUMA K. Effects of fourth alloying additive on microstructures and tensile properties of Sn-Ag-Cu alloy and joints with Cu[J]. Microelectronic Reliability, 2003, 43(2): 259–267.
- [20] CLYNE T W, WITHERS P J. An introduction to metal matrix composites[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1993.
- [21] 崔忠圻. 金属学与热处理[M]. 北京: 机械工业出版社, 2000: 56–57.
- CUI Zhong-qi. Physical metallurgy and heat treatment[M]. Beijing: China Machine Press, 2000: 56–57.
- [22] SHEN J, CHEN Y C. Research advances in nano-composite solders[J]. Microelectronic Reliability, 2009, 49(3): 223–234.
- [23] 刘晓英, 马海涛, 王 来. 超细氧化物颗粒对 Sn-58Bi 钎料组织及性能影响[J]. 大连理工大学学报, 2008, 48(1): 51–57.
- LIU Xiao-ying, MA Hai-tao, WANG Lai. Effect of four kinds of oxides on mechanical properties and microstructures on Sn-58Bi[J]. Journal of Dalian University of Technology, 2008, 48(1): 51–57.
- [24] MAVOORI H, JIN S. Dispersion strengthening for dimensional stability in low-melting-point solders[J]. JOM, 2000, 52(6): 30–32.

(编辑 龙怀中)