

高温无铅软钎料的研究进展

樊江磊 王宁格 魏泽新 刘建秀
(郑州轻工业大学机电工程学院)

摘要 分析了高温无铅钎料的熔化行为、力学性能、铺展性能、导电导热性能以及钎料的稳定性和可靠性等,总结了这些高温无铅软钎料的特点以及在使用过程中存在的不足。归纳了改善方案和结果,旨在为高温无铅软钎料的设计与开发提供参考。

关键词 高温无铅软钎料;成分设计;力学性能;钎焊性能

中图分类号 TG425;TG146.1⁺2

文献标志码 A

DOI:10.15980/j.tzzz.2022.06.011

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



Research Progress in High Temperature Lead-free Solder

Fan Jianglei, Wang Ningge, Wei Zexin, Liu Jianxiu

(School of Mechanical and Electrical Engineering, Zhengzhou University of Light Industry)

Abstract: The melting behavior, mechanical properties, spreadability, electrical and thermal conductivity, stability and reliability were analyzed, and the characteristics as well as the defects were summarized. Moreover, the modified plans and results made by relevant scientific researchers in response to these drawbacks were introduced, aiming to provide reference for the design and development of high-temperature lead-free solder.

Key Words: High Temperature Lead-free Solder, Alloy Design, Mechanical Property, Brazing Performance

近年来,电子元器件的功能越来越多,功率显著提高,高温软钎料在电子封装的高温领域得到了广泛应用^[1,2]。电子元器件的服役环境越来越复杂,尤其是在较高的工作温度下(250~300℃),要实现高性能接头,就需要高熔点的钎料^[3,4]。其中,Pb-Sn钎料因为具有润湿性良好、成本低、熔点低等特点被广泛使用在很多电子产品中^[5]。以Pb-5Sn、Pb-10Sn及Pb-2Sn-2.5Ag(质量分数,下同)等为代表的高温钎料合金中Pb含量

均高于85%,这些高铅钎料以优异的力学性能和钎焊性能为高温环境下工作的元器件提供了稳固而可靠的连接,常被用于大功率电源、航空航天、交通运输等领域^[6]。但随着环保要求提高,高温无铅钎料的研究得到越来越多的重视^[7]。目前有关无铅钎料的研究主要集中在低温无铅钎料上,而关于高温无铅软钎料的研究报道较少^[8~10]。表1为常见钎料合金的熔化特性。综述了高温无铅软钎料(Au基、Bi基、Zn基和Sn基)的研

收稿日期:2021-07-12;修改稿收到日期:2021-08-27

基金项目:国家自然科学基金资助项目(U1904175);河南省高等学校青年骨干教师培养计划资助项目(2018GGJS090);河南省研究生教育改革与质量提升工程资助项目(YJS2021AL026);郑州市重大科技创新专项基金资助项目(2019CXZX0065)

第一作者简介:樊江磊,男,1983年出生,副教授,郑州(450002),E-mail:JLFan2011@163.com

引用格式:樊江磊,王宁格,魏泽新,等.高温无铅软钎料的研究进展[J].特种铸造及有色合金,2022,42(6):726-731.

FAN J L, WANG N G, WEI Z X, et al. Research progress in high temperature lead-free solder[J]. Special Casting & Nonferrous Alloys, 2022, 42(6):726-731.

[74] CHEN J, PAN Q L, YU X H, et al. Effect of annealing treatment on microstructure and fatigue crack growth behavior of Al-Zn-Mg-Sc-Zr alloy[J]. Journal of Central South University, 2018, 25(5): 961-975.

[75] CHEN X, LIU Z, LIN M, et al. Enhanced fatigue crack propagation resistance in an Al-Zn-Mg-Cu alloy by retrogression and reaging treatment[J]. Journal of Materials Engineering and Performance, 2012, 21(11): 2 345-2 353.

[76] 王勇,唐建国,邓运来,等.时效状态对7020铝合金疲劳性能的影响[J].中南大学学报(自然科学版),2018,49(11):2 684-2 691.

[77] SHARMA V M J, KUMAR K S, RAO B N, et al. Fatigue crack growth of AA2219 under different aging conditions[J]. Materials

Science and Engineering, 2011, A528: 4 040-4 049.

[78] 张乐,袁海洋,游张平.激光冲击强化改善2A12高强铝合金疲劳寿命的试验研究[J].轻金属,2017(3):39-41.

[79] 王亮,臧金鑫,王任,等.喷丸处理对7A85-T7452铝合金锻件疲劳性能的影响[J].轻金属,2021(5):43-46.

[80] 李彬.7075铝合金不同表面强化工艺的对比试验研究[J].轻合金加工技术,2016,44(11):36-40.

[81] 肖阳,袁海洋.7075铝合金三种表面强化工艺对比试验[J].轻金属,2019(1):54-57.

[82] 余光群,袁海洋.滚压-时效强化改善6061铝合金疲劳性能的试验研究[J].轻金属,2018(10):50-53.

(编辑:栗万仲)

究进展^[11~45],总结了从各种钎料合金的生产工艺到实际工作过程中的性能以及优缺点,以期为高温无铅软钎料的设计与开发提供参考和指导。

表 1 常见钎料合金的熔化温度范围

Tab.1 Melting temperature ranges for typical solders			
合金系	名义成分	固相线温度/℃	液相线温度/℃
Pb-Sn ^[13]	Pb-35Sn	183	248
	Pb-30Sn	183	248
	Pb-20Sn	183	279
Au-Sn	Au-20Sn ^[14]	280	280
	Sn-5Au ^[15]	215~217	215~217
Au-Ge ^[20]	Au-0.28Ge	360	360
Bi-Ag	Bi-2.5Ag ^[23]	262.5	262.5
	Bi-10Ag ^[24]	261.4	380.6
Zn-Al	Zn-6Al ^[14,15]	381	381
	Zn-4Al-3Mg-3.2Ga ^[30]	309	347
Zn-Sn ^[31]	Zn-20Sn	198	383
	Zn-30Sn	198	374
	Zn-40Sn	198	365
Sn-Sb ^[45]	Sn-5Sb	245	245

1 Au 基无铅钎料

Au-Sn 基钎料合金有望作为传统高铅钎料的替代合金。其中,Au-20Sn 钎料合金具有优异的高温性能、优异的耐腐蚀性能、高电导率和高强度等,能够保证焊接接头在整个过程中的稳定性和可靠性,是一种优异的高温无铅钎料^[14,15]。Au-20Sn 钎料合金属于硬质钎料,熔点为 280 ℃,在电子行业的器件封装等方面得到广泛的使用。LIU Y C 等^[16]发现 Au-20Sn 钎料的硬度在 25~200 ℃内随着温度的升高呈逐渐降低的趋势。其中在 25~150 ℃内,硬度的变化是线性变化的,随着温度继续升高到 200 ℃时,硬度(HV)的逐渐趋于稳定,并保持在 200 左右。同时,随着温度升高,Au-20Sn 钎料合金的蠕变速率和蠕变应变率增加,可能会导致在使用过程中产生较大的塑性变形,从而影响焊接的稳定性。ZHANG G S 等^[17]研究发现 Au-20Sn 钎料合金的稳态蠕变速率比传统的 Sn-Pb 钎料合金更低,即抗蠕变性能更好。CHUNG H M 等^[18]研究了 Au-20Sn 钎料合金在 330 ℃下在 Cu 基体上的回流反应,发现经过 1 min 回流后,凝固的钎料合金基体出现不规则生长的 (Au, Cu)₅Sn 和片层状的 AuCu 相。当回流时间延长至 60 min 时,钎料合金基体中出现 (Au, Cu)₅Sn 枝晶的生长,这是由于 Cu 从钎料基体中扩散到已经熔化的钎料合金基体中造成的。周涛等^[19]在室温条件下测得 Au-20Sn 钎料合金的抗拉强度为 275 MPa,剪切模量为 25 GPa,接头剪切强度为 47.5 MPa,电阻率为 16.4 × 10⁻⁶ Ω · cm,热导率为 57 W/(m · K),具有优良的综

合性能。

Au-Ge 基钎料也是一种研究较多的高温无铅钎料。Au-Ge 基钎料具有较低的蒸气压和接触电阻、良好的耐腐蚀性和抗氧化性、合适的润湿性,而且高温稳定性较好,焊接时不易形成脆性相,所以焊接强度较高,焊接接头较稳定^[20]。Au-Ge 基钎料大多被应用于高真空焊接以及某些特殊高温材料的焊接。Au-Ge 基钎料的共晶熔化温度是 360 ℃,稍微偏离了允许的液相线温度。通过在 Au-Ge 钎料合金中加入 Sb 或 Sn 等熔点较低的金属,最终实现熔点的降低。CHIDAMBARAM V 等^[21]发现在 Au-Ge 共晶中加入 Sb 可以明显降低其熔点,还可以提高钎料合金的塑性。通过对 Au-Ge-Sb、Au-Ge-Sn 和 Au-Ge-In 钎料合金进行时效处理,发现 Au-Ge-In 合金的微观组织即使经过长期的时效处理仍相对稳定,因为 In 原子引起的晶格畸变是最有效的强化机制。Au-30Ga 钎料是一种高导热性的新型高温钎料,具有适宜的共晶温度,有望在大功率器件封装中得到广泛的应用。LIU H 等^[22]发现 Au-30Ga 钎料在 Ni 和 Cu 基体上都具有良好的润湿性。但是,Au-30Ga 合金液在与 Ni 和 Cu 基体接触时的润湿行为却有明显的不同,由反应润湿形成两个薄的 Ni-Ga 化合物层和一个宽的润湿环转变为溶解润湿而形成厚的 (Au, Cu)₉Ga₄界面层。

尽管 Au 基高温无铅钎料有较多优点,但是 Au 成本很高,同时 Au 基钎料的伸长率低,难以加工成线材或片材。而且,焊接接头在较高温度环境下工作时,因为钎料硬度较高、塑性较差,可能会导致接头产生的热应力直接传递到电子元器件上,造成芯片等电子元器件失效。所以,综合考虑,Au 基钎料尚无法替代传统高铅钎料。

2 Bi 基无铅钎料

Bi 基钎料被认为极有可能替代传统高铅钎料的一种无铅钎料。Bi 合金的熔点在 270 ℃左右,其中 Bi-Ag 系无铅钎料的熔点为 271 ℃,这与传统的 Pb-5Sn 高铅钎料熔点接近,且无毒性^[23]。由于 Ag 的加入,使 Bi 的导电性和导热性等得到显著提高。但是 Ag 含量越高,Bi-Ag 系钎料合金的液相线温度也随之提高。综合考虑钎料合金的性能,Bi-Ag 系合金中的 Ag 含量为 10%~12%。Bi-2.6Ag 共晶钎料是研究最多的,其熔点约为 263 ℃^[24]。同时,这种钎料与传统高铅钎料 Pb-5Sn 的显微硬度接近,价格也较低。Bi 基钎料合金的脆性较大,不易加工成形,而且与基体的连接也不稳定,导

电性和湿润性较差,这一直是研究的重点^[25]。通过添加合金元素来改善 Bi-Ag 基钎料的综合性能是常用的方法。Ag 的添加还可以改变 Bi 基钎料的脆性,但是当 Ag 含量增加到 5% 时,Bi 基钎料的熔化区间为 45 ℃,导致了钎料的润湿性变差,在 Cu 基体上的润湿角约为 90°^[26]。LEE D Y 等^[27]在 Bi-2.6Ag-0.1Cu 合金中加入不同含量的 Sb 元素,发现随着 Sb 含量增加,钎料合金的固相线温度基本维持在 260 ℃,而液相线温度则从 268 ℃上升到了 288 ℃。当 Sb 含量达到 2% 时,析出了 Cu₂Sb 和 Ag₃Sb 等金属间化合物,并且成分相同的钎料合金的润湿角随着测试温度的增大而减小。在相同的回流测试温度条件下,钎料合金的润湿角随着 Sb 含量的增加而减少。Sb 的加入增强了钎料合金的流动性,提高了其铺展性能。TAKAKU Y 等^[28]研究了在 Bi-Cu 钎料合金中加入 Sb、Sn 或 Zn 形成的三元高温无铅金属间化合物,发现气雾化法可以形成原位型复合物和球型组织,钎料合金的组成成分在溶解度间隙中间区域时,组织呈球形;合金成分在溶解度间隙内的边缘区域时,组织呈原位复合型组织。SONG J M 等^[29]研究了 Cu 基板与 Bi-Ag 钎料合金在焊接过程中的界面反应,发现在不形成金属间化合物(IMC)的情况下,熔融钎料沿着铜基板的晶界(GBs)开槽并进一步渗透。Ag 含量的增加促进了 GBs 沟槽的形成,并且提高了溶解速率,也提高了熔融 Bi 中 Cu 的溶解量。此外,Bi-Ag/Cu 接头比 Pb-Sn/Cu 接头具有更好的剪切强度,这意味着晶界凹槽的机械结合强度足以承受剪切变形。

YIN L M 等^[30]通过 Sn 合金化(1%、3%、5%),发现 Bi-11Ag 钎料合金的熔化温度从 265 ℃降至 255 ℃。随着 Sn 含量增加,钎料在 Cu 基体上的接触角由 62°减小到 41°。Cu/Bi-11Ag-*x*Sn 钎料/Cu 夹芯结构微尺度钎料接头的抗拉强度有所提升,从最初的 43.3 MPa 增加到 53.9 MPa,断裂的位置从 Cu/钎料界面转到钎料中部。此外,根据钎料/Cu 界面的 EDS 分析,可识别出 Cu₃Sn 金属间化合物(IMC)层。该 IMC 层与钎料/Cu 界面的晶界凹槽相结合,可有效提高 Bi-11Ag-*x*Sn 钎料的强度。当 Sn 含量不高于 3% 时,显微组织中的枝晶会得到细化,图 1 为 Bi-11Ag-*x*Sn 钎料的 SEM 形貌和元素面扫描。可见 Bi-11Ag 合金组织由广泛的 Bi(白色部分)和均匀分布的枝晶初生 Ag(黑色部分)组成,还有少量的 Ag 与 Bi 混合,即 Bi-Ag 共晶。在 Bi-11Ag-3Sn 钎料中,初生枝晶 Ag 相比 Bi-11Ag 钎料中的更细小。Bi-11Ag-5Sn 钎料中初生枝晶 Ag 相比 Bi-11Ag 和 Bi-11Ag-3Sn 钎料的大得多,元素面扫描显示 Sn 在基体中富集,见图 1f。

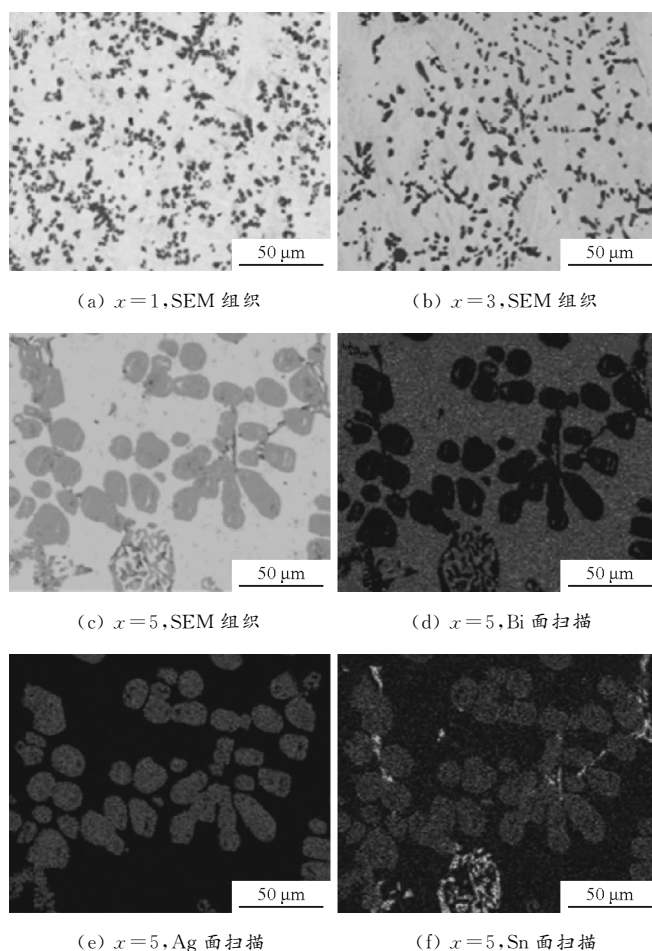


图 1 Bi-11Ag-*x*Sn 钎料的 SEM 组织和 EDS 面扫描^[28]

Fig.1 SEM images and EDS scanning of Bi-11Ag-*x*Sn solders

3 Zn 基无铅钎料

Zn 基无铅钎料主要包括 Zn-Al 系和 Zn-Sn 系。Zn-Al 系钎料熔化温度较高,约为 381 ℃,可在 377~450 ℃内使用^[31~33]。Zn-Al 系钎料合金具有良好的导电性和较高的强度。Zn 基体可与 Al 发生固溶反应,改善液态钎料的流动性,提高焊接接头的可靠性。但是,Zn-Al 系钎料合金的塑性较差,难以加工成丝状或带状,且润湿性不好,抗氧化性和耐腐蚀性也较差。通过加入 Be 元素,可以细化晶粒,降低熔融钎料的表面张力,改善钎料在铝合金表面的铺展性能^[34]。通过合金化可形成三元 Zn-Al 基钎料。Cu 可以提高钎料合金的硬度和抗拉强度。Zn-Al-Cu 钎料合金具有良好的钎焊工艺性能和力学性能,钎焊效果良好。JUN T 等^[35]发现添加 Cu 可增加 Zn-Al 钎料的铺展面积和电阻率。加入 Mg 后的 Zn-4Al-3Mg 合金的共晶温度为 343 ℃,加入 Ge 后的 Zn-6Al-5Ge 合金共晶温度为 352 ℃。在此基础上添加 Sn、In 和 Ga 等低熔点的金属元素可以降低钎料合金的熔点。比如,在 Zn-4Al-3Mg 合金中加入一定量的 Ga 后,合金的熔化温度范围为 309~347

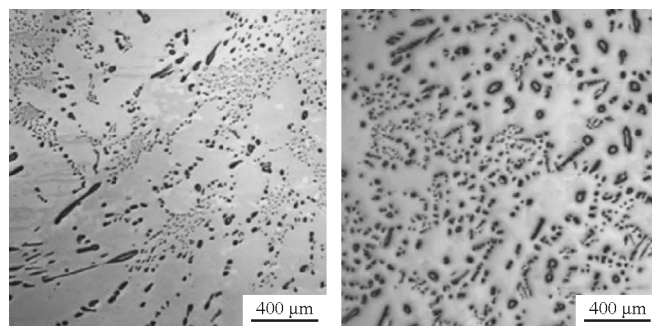
℃,符合工艺要求。通过加入 In, Zn-Al 与 In 的热膨胀系数(CTE)和电阻率均有所提高,且 In 在 Zn-Al 中溶解,没有金属间化合物(IMC)的析出。在 Al-Zn 合金中加入 Li 后,合金的耐腐蚀性和力学性能均有所提高,改进的高温钎料合金的性能将扩大其在工业、运输、海洋和航空航天领域的应用范围。在共晶 Zn-Al 合金中加入 Na 后,其力学性能有所提高,形成了少量的 IMC 相 NaZn_{13} 。GANCARZ T 等^[36]发现随着 Na 含量增加, $\text{ZnAl}(\alpha+\eta)$ 相的片层结构面积也增加, NaZn_{13} 析出相数量增加,电阻率、显微硬度和强度增加,但在加入 3.0% 的 Na 时,合金的脆性增大。

Zn-Sn 系钎料合金的组织里没有金属间化合物,具有较好的力学性能,良好的导电性和导热性,且价格便宜。Zn-20Sn 钎料合金的熔化区间为 371.2~389.5 ℃,且电导率较高,价格低。KIM S J 等^[37]研究了 Zn- x Sn ($x=20,30$ 和 40,质量分数)钎料合金与 Cu 基板的界面反应,发现剪切强度达到 30~34 MPa,高于 Pb-5Sn 钎料的剪切强度,其中界面金属间化合物的厚度可以通过调控钎焊温度和保温时间控制。赵快乐^[38]研究了在 Zn-20Sn 钎料合金中加入不同含量的 Cu 后,发现随着 Cu 含量增加, Zn-20Sn 钎料的熔点和液相线温度都变低,固液相温度区间变窄。其中 Cu 含量高于 6% 时, Zn-20Sn 钎料的导电性逐渐下降,其抗拉强度提高到 180.1 MPa,提高了约 25%。HASAN M M 等^[39]将少量 Ni 与 Zn 进行合金化研究,发现 Zn-Ni 钎料的微观结构由 β -Zn 和 Zn-Ni 金属间化合物(γ 相)组成。共晶组织、晶界颗粒和不规则第二相中 γ 相 Zn-Ni 金属间化合物(NiZn_5)代替 δ 相金属间化合物的出现;还发现 Ni 的添加可提高钎料合金的力学性能,保持导电性不变。与传统 Pb-Sn 焊料和其他 Zn 基合金相比, Zn-Ni 钎料作为高温钎料是非常合适的。

4 Sn 基无铅钎料

Sn 基高温无铅钎料是以 Sn 为基体,通过合金化提高综合性能,主要合金化元素包括 Cu、Ni、Ag、Co、Bi、Sb 等^[40~43]。与 Sn-Pb 钎料相比, Sn-Cu 系钎料成本仅增加 20%,是成本较低的无铅钎料之一。Sn-Cu 系钎料在室温下形成 Sn 和 Cu_6Sn_5 共晶组织,其熔点约为 227 ℃。Sn-0.7Cu 钎料因具有强度高、塑性好、电导率低等特点,常作为无铅钎料的基体,其共晶合金在凝固时, Cu 与 Sn 会反应生成颗粒状或棒状的 Cu_6Sn_5 金属间化合物,且弥散分布在树枝状的 β -Sn 基体上(见图 2^[44])。在 Sn-0.7Cu 中添加 Ni 可以改善钎料的综合性能。对比发现, Sn-0.7Cu-1Ni 钎料具有较好的综合性

能^[45]。



(a) 不含 Ni (b) 含 Ni
图 2 不同 Ni 含量的 Sn-0.7Cu 钎料微观组织形貌
Fig.2 Effects of Ni content on microstructure of Sn-0.7Cu solders

Sn-Ag 系钎料熔点为 221 ℃,比 Sn-Pb 共晶钎料高 38 ℃, Sn-Ag 系钎料及以其为基体的多元钎料具有力学性能好、可靠性高等特点,但 Sn-Ag 钎料存在熔点较高、钎焊界面存在应力集中等缺点^[46,47]。Sn-Zn 基钎料目前已经广泛应用于电子工业, Sn-9Zn 钎料的熔点适宜、力学性能优良,焊点抗剪切强度高,室温下抗疲劳性能好,电迁移效应也较为优良,此外还有成本低廉、Zn 资源丰富等优势。Sn-Sb 钎料也是目前研究较多的 Sn 基高温无铅软钎料之一。Sn-Sb 合金由 SnSb 相和 Sn 基固溶体组成, SnSb 相可提高钎料的显微硬度等力学性能。Sb 含量为 5% 时,硬度(HV)为 20.04,当 Sb 含量增加到 10% 时,硬度(HV)为 29.50。TATSUYA K 等^[48]研究发现, Sn-5Sb- x Ni 焊料的熔化区间与 Sn-5Sb 合金的大致相同。随着 Sn-5Sb-Ni 焊料中 Ni 含量增加, NiSb 相的数量增加,且发生粗化,因此,抗拉强度增加,在 25 ℃ 时的伸长率降低。与此同时,在 25~200 ℃ 内, Ni 质量分数为 0.05%~0.10% 的 Sn-5Sb-Ni 焊料具有优于 Sn-5Sb 焊料的抗疲劳性能。CHEN S W 等^[49]发现 Sn-5Sb 具有优异的热疲劳性能和较高的断裂强度。TATSUYA K 等^[50]发现室温下 Sn-5Sb 钎料的抗拉强度低于 Sn-10Sb 钎料。随着温度升高,两种钎料的抗拉强度都出现了降低的趋势。但是, Sn-5Sb 钎料合金的伸长率逐渐增大。LI C J 等^[51]和 SCHOELLER H 等^[52]研究确定了 Sn-5Sb 钎料合金在常温条件下的蠕变应力值,又根据第二相颗粒的体积分数值 8.6%,确定 Sn-5Sb 钎料合金的蠕变机理为位错爬升。简虎等^[53]通过 Cu 合金化提高了 Sn-Sb 钎料的润湿性能。PLEVACHUK Y 等^[54]发现 Cu 可以降低 Sn-Sb 钎料的电阻率,但增加了合金熔体的粘度。杨磊^[55]和陈海燕等^[56]在通过对 Sn-Sb-Cu-Ni 系钎料合金的研究发现,该钎料的导电性和导热性随着 Sb 含量的增加而呈现先增加后减少的趋势,钎焊接头在低温下稳定性和可

靠性较高。

5 结 语

Au基钎料具有较高的强度,良好的导电性和导热性,较好的耐蚀性。但是Au基钎料的硬度较大,塑性差,可加工性能不足,而且Au基钎料价格昂贵,应用受限。Bi基钎料的成本低于Au基钎料,但是Bi的脆性更大,虽然合金化可降低其脆性,但在使用过程中仍存在较多问题。Zn基钎料具有成本较低,力学性能较好的特点,但是润湿性较差,焊点的强度和可靠性不足。Sn-Sb系合金的成本价格最低,但是合金的熔点偏低,在高温工作环境下不能保证其稳定性和可靠性,同时在熔化行为、脆性等方面还有很大的改善空间。

综上,由多元素合金化的高温无铅软钎料在提升钎焊性能方面取得了一定进展。但是,从成本、性能、可加工性等方面综合考虑,高温无铅软钎料的设计和开发等方面还需更深入研究。

参 考 文 献

- [1] 戎万, 操齐高, 郑晶, 等. 高温钎料焊膏研究进展[J]. 贵金属, 2020, 41(S1): 43-47.
- [2] 王刘珏, 薛松柏, 刘晗, 等. 电子封装用 Au-20Sn 钎料研究进展[J]. 材料导报, 2019, 33(15): 2 483-2 489.
- [3] 郭永权. Sn-Cu-Ni 系钎料的研究现状[J]. 焊接, 2015(12): 16-23.
- [4] 姜乃政. 高温无铅钎料制备及其性能分析[D]. 武汉: 华中科技大学, 2018.
- [5] 曾秋莲, 顾小龙, 赵新兵, 等. 高温高铅钎料无铅化的研究进展[J]. 电子元件与材料, 2008(8): 16-19.
- [6] 甘贵生, 杜长华, 甘树德. 电子微连接高温无铅钎料的研究进展[J]. 功能材料, 2013, 44(S1): 28-35.
- [7] 樊江磊, 刘占云, 李育文, 等. Sn-Cu 系无铅钎料微合金化研究进展[J]. 材料导报, 2018, 32(21): 3 774-3 779.
- [8] GERANMAYEH A R, MAHMUDI R, KANGOOIE M. High-temperature shear strength of lead-free Sn-Sb-Ag/Al₂O₃ composite solder[J]. Materials Science and Engineering, 2011, A528(12): 3 967-3 972.
- [9] MAHMUDI R, ESLAMI M. Shear strength of the Zn-Sn high-temperature lead-free solders[J]. Journal of Materials Science Materials in Electronics, 2011, 22(8): 1 168-1 172.
- [10] CHE W C, KWANG L L. High-temperature mechanical properties of zn-based high-temperature lead-free solders[J]. Journal of Electronic Materials, 2019, 48(1): 135-141.
- [11] ZENG G, MCDONALD S, NOGITA K. Development of high-temperature solders; Review [J]. Microelectronics Reliability, 2012, 52(7): 1 306-1 322.
- [12] 方继恒, 谢明, 张吉明, 等. 金/钯基贵金属钎料研究进展[J]. 中国有色金属学报, 2017, 27(8): 1 659-1 669.
- [13] XING F, QIU X. Thermal properties, electrochemical behavior, and microstructure of Zn-5Sn-2Cu-1.5Bi-*x*RE high-temperature solder[J]. Journal of Materials Engineering and Performance, 2015, 24(4): 1 679-1 686.
- [14] 王子伊, 薛松柏, 王剑豪, 等. 添加合金元素改善 Au-Ge 钎料组织及性能的研究进展[J]. 材料导报, 2020, 34(23): 145-153.
- [15] 刘晗, 薛松柏, 王刘珏, 等. 金基中低温钎料的研究现状与展望[J]. 材料导报, 2019, 33(19): 3 189-3 195.
- [16] LIU Y C, TEO J W R, TUNG S K, et al. High-temperature creep and hardness of eutectic 80Au/20Sn solder[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2008, 448(1-2): 340-343.
- [17] ZHANG G S, JING H Y, XU L Y, et al. Creep behavior of eutectic 80Au/20Sn solder alloy-Science direct[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2009, 476(1): 138-141.
- [18] CHUNG H M, CHEN C M, LIN C P, et al. Microstructural evolution of the Au-20Sn solder on the Cu substrate during reflow[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2009, 485(1-2): 219-224.
- [19] 周涛, 汤姆·鲍勃, 马丁·奥德, 等. 金锡钎料及其在电子器件封装领域中的应用[J]. 电子与封装, 2005(8): 9-12.
- [20] CHIDAMBARAM V, HALD J, HATTEL J. Development of Au-Ge based candidate alloys as an alternative to high-lead content solders[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2010, 490(1-2): 170-179.
- [21] CHIDAMBARAM V, HATTEL J, HALD J. Design of lead-free candidate alloys for high-temperature soldering based on the Au-Sn system[J]. Materials & Design, 2010, 31(10): 4 638-4 645.
- [22] LIU H, XUE S B, TAO Y, et al. Wetting behavior and vacuum soldering of novel Au-30Ga solder on Ni and Cu substrate[J]. Vacuum, 2020, 179: 109 478.
- [23] SONG J M, CHUANG H Y, WU Z M. Interfacial reactions between Bi-Ag high-temperature solders and metallic substrates[J]. Journal of Electronic Materials, 2006, 35(5): 1 041-1 049.
- [24] SHI Y, FANG W, XIA Z, et al. Investigation of rare earth-doped Bi-Ag high-temperature solders[J]. Journal of Materials Science Materials in Electronics, 2010, 21(9): 875-881.
- [25] WU X L, WU J W, WANG X J, et al. Effect of In addition on microstructure and mechanical properties of Sn-40Bi alloys[J]. Journal of Materials Science, 2020, 55(8): 3 092-3 106.
- [26] YANG L, ZHU, L, ZHANG Y C, et al. Microstructure and reliability of Mo nanoparticle reinforced Sn-58Bi-based lead-free solder joints[J]. Materials Science and Technology, 2018, 34(7/8): 992-1 002.
- [27] LEE D Y, KIM B, LEE C W, et al. Effect of Sb addition on Bi-2.6Ag-0.1Cu solders for high-temperature applications[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2014, 592: 207-212.
- [28] TAKAKU Y, YAMADA Y, YAGI Y, et al. Reliability of wire-bonding and solder joint for high temperature operation of power semiconductor device[J]. Microelectronics Reliability, 2007, 47(12): 2 147-2 151.
- [29] SONG J M, CHUANG H Y, WU Z M. Substrate dissolution and shear properties of the joints between Bi-Ag alloys and Cu substrates for high-temperature soldering applications[J]. Journal of Electronic Materials, 2007, 36(11): 1 516-1 523.
- [30] YIN L M, LI D, YAO Z X, et al. Effects of Sn addition on the microstructure and properties of Bi-11Ag high-temperature solder[J]. Journal of Materials Science Materials in Electronics, 2018,

- 29(14): 1-8.
- [31] 李小军, 田君, 戴品强, 等. RE 及 Ni 对 Zn20Sn 高温无铅钎料显微组织及性能的影响[J]. 稀有金属材料与工程, 2018, 47(6): 1 860-1 865.
- [32] MOHAMMAD M H, AHMED S, et al. Characteristics of eutectic and near-eutectic Zn-Al alloys as high-temperature lead-free solders[J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2020, 31(10): 1-12.
- [33] JUSZCZYK B, KULASA J, GUBERNAT A, et al. Influence of chemical composition and production process parameters on the structure and properties of silver based composites with ZnO/ocena wpływu składu chemicznego oraz parametrów wytwarzania Na strukturę i właściwości kompozytów Na osnowie S[J]. Archives of Metallurgy & Materials, 2012, 57(4): 1 063-1 073.
- [34] KANG N, NA H S, KIM S J, et al. Alloy design of Zn-Al-Cu solder for ultra high temperatures[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2009, 467(1-2): 246-250.
- [35] JUN T, HONG C F, HONG L H, et al. Effect of rare earth metals on the properties of Zn-20Sn high-temperature lead-free solder[J]. Journal of Electronic Materials, 2019, 48(5): 2 685-2 690.
- [36] GANCARZ T, CEMPURA G. Characterization of ZnAl cast alloys with Na addition[J]. Materials Characterization, 2016, 111: 147-153.
- [37] KIM S J, KIM K S, KIM S S, et al. Interfacial reaction and die attach properties of Zn-Sn high-temperature solders[J]. Journal of Electronic Materials, 2009, 38(2): 266-272.
- [38] 赵快乐. Zn 基新型高温无铅软钎料研究[D]. 河南洛阳: 河南科技大学, 2012.
- [39] HASAN M M, SHARIF A, GAFUR M A. Effect of minor addition of Ni on the microstructure and properties of Zn-based high-temperature solder[J]. Journal of Electronic Materials, 2020, 49(6): 3 990-4 001.
- [40] 张亮, 杨帆, 孙磊, 等. 近十年含稀土无铅钎料研究进展及发展趋势[J]. 稀土, 2017, 38(1): 126-133.
- [41] HE H, HUANG S, XIAO Y, et al. Diffusion reaction-induced microstructure and strength evolution of Cu joints bonded with Sn-based solder containing Ni-foam[J]. Materials Letters, 2020, 281(15): 128 642.
- [42] CHENG S, HUANG C M, PECHT M. A review of lead-free solders for electronics applications[J]. Microelectronics and Reliability, 2017, 75(8): 77-95.
- [43] 徐衡, 罗登俊, 颜炎洪, 等. 微量元素添加对多元 Sn-Bi 系焊料合金组织与性能的影响[J]. 微纳电子技术, 2021, 58(2): 124-130.
- [44] 翟恒涛. Ni 含量对 Sn-0.7Cu 无铅钎料合金组织和钎焊性能的影响[D]. 郑州: 郑州轻工业大学, 2020.
- [45] NOGITA K, READ J, NISHIMURA T, et al. Microstructure control in Sn-0.7 mass% Cu alloys[J]. Materials Transactions, 2005, 46(11): 2 419-2 425.
- [46] KYOSUK E, KOBAYASH I, IKU O, et al. Fracture behaviors of miniature size specimens of Sn-5Sb lead-free solder under tensile and fatigue conditions[J]. Procedia Engineering, 2017, 184: 238-245.
- [47] MU D K, MCDONALD S D, READ J, et al. Critical properties of Cu₆Sn₅ in electronic devices: Recent progress and a review[J]. Current Opinion in Solid State & Materials Science, 2016, 47(19): 55-76.
- [48] TATSUYA K, KOHEI M, IKUO S, et al. Effects of Ni Addition to Sn-5Sb high-temperature lead-free solder on its microstructure and mechanical properties[J]. Materials Transactions, 2019, 60(6): 888-894.
- [49] CHEN S W, CHEN C C, GIERLOTKA W, et al. Phase equilibria of the Sn-Sb binary system[J]. Journal of Electronic Materials, 2008, 37(7): 992-1 002.
- [50] TATSUYA K, KYOSUKE K, KOHEI M, et al. Comparison of Sn-5Sb and Sn-10Sb alloys in tensile and fatigue properties using miniature size specimens[J]. Advances in Materials Science & Engineering, 2018(1): 1-9.
- [51] LI C J, YAN Y F, GAO T T, et al. The microstructure, thermal, and mechanical properties of Sn-3.0Ag-0.5Cu-xSb high-temperature lead-free solder[J]. Materials, 2020, 13(19): 4 443-4 448.
- [52] SCHOELLER H, BANSAL S, KNOBLOCH A, et al. Effects of microstructure evolution on high-temperature mechanical deformation of Sn-5Sb[A]. //2008 International Mechanical Engineering Congress and Exposition[C]. 2008.
- [53] 简虎, 熊腊森. Sn-Sb-Cu(Bi) 系无铅钎料的研究[J]. 电子质量, 2005(8): 55-58.
- [54] PLEVACHUK Y, SKLYARCHUK V, YAKYMOVYCH A, et al. Electrical conductivity and viscosity of liquid Sn-Sb-Cu alloys[J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2011, 22(6): 631-638.
- [55] 杨磊. 新型无铅钎料 Sn-Sb-Cu-Ni 性能的研究[D]. 广州: 广东工业大学, 2011.
- [56] 陈海燕, 曾键波, 谢羽, 等. Sn-Sb-Cu-Ni 钎料和焊点在低温条件下组织和性能研究[J]. 材料工程, 2015, 43(11): 57-64.

(编辑: 刘晨辉)

中国一季度新能源车销量 占世界 59% 的份额

2022 年 1~3 月, 世界广义的新能源汽车销量为 299 万辆。其中, 混合动力达到 92 万辆, 占比为 31%。中国新能源汽车销量的世界占比为 59%, 表现优秀。主要是因中国的新能源汽车需求强, 而欧洲的传统汽车和新能源汽车产销偏低, 因而在占比方面呈现领先趋势。中国带动世界增量主要是中国新能源车市场转向市场化推动, 形成了较强的内生增长动力。

(摘自压铸周刊)