



Development of lead-free soft solder alloy via accumulative roll bonding



M. H. Nourmohammadi, M. Movahedi*, A. H. Kokabi


Faculty of Materials Science and Engineering, Sharif University of Technology, Tehran, Iran.

Received 31 March 2024 ; Accepted 18 May 2024

Abstract

Soldering plays a crucial role in the electronics industry, driving the need for constant improvements in physical and mechanical properties and the management of intermetallic compound formation. Research in composite materials aims to achieve a uniform distribution of reinforcing particles within solder matrix to enhance their performance. This study investigates the integration of cobalt microparticles into SAC0307 lead-free soft solder alloy using the accumulative roll bonding (ARB) method. Microstructural analysis confirmed a homogeneous dispersion of cobalt particles within the solder after three ARB passes. Moreover, increasing cobalt content led to a reduction in the size of Cu_6Sn_5 intermetallic compounds, from $9 \mu\text{m}$ to $5 \mu\text{m}$ with 1% cobalt by weight. Examination of $\beta\text{-Sn}$ grain morphology revealed the impact of cobalt particles on recovery and recrystallization kinetics in the solder. Mechanical testing indicated a 20% decrease in interlayer strength within composite solder sheets. Tensile tests showed a 28% increase in strength and a 31% decrease in elongation for composite solder alloy containing 1% cobalt. Differential scanning calorimetry (DSC) results revealed minimal change in the melting temperature of composite solder foil.

Keywords: Lead-free solders; Metal composites; Intermetallic compound; Microstructure; Accumulative Roll Bonding.

 *Corresponding Author: M.Movahedi, m_movahedi@sharif.edu



کامپوزیت سازی آلیاژ لحیم نرم بدون سرب به روش اتصال نورد انباشتی

محمد هادی نور محمدی، مجتبی موحدی*، امیر حسین کوبی

دانشکده مهندسی و علم مواد، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران.

دریافت مقاله: 1403/01/12؛ پذیرش مقاله: 1403/02/29

چکیده

لحیم کاری نرم از پرمصرف ترین فرایندهای اتصال دهی در صنعت الکترونیک است. بهبود خواص فیزیکی و مکانیکی و همچنین کنترل تشکیل و رشد ترکیبات بین فلزی، زمینه ساز گسترش تحقیقات در زمینه کامپوزیت سازی شده است. توزیع یکنواخت از ذرات سخت در زمینه لحیم، طوری که خواص فیزیکی و مکانیکی را بهبود بخشد می تواند معیاری موفقیت آمیز برای رسیدن به آلیاژهای لحیم کامپوزیتی باشد. در این پژوهش با بهره گیری از روش اتصال دهی نورد انباشتی (ARB)، کامپوزیت سازی آلیاژ لحیم نرم بدون سرب SAC0307 با استفاده از میکروذرات کبالت انجام شد. در ادامه جهت بررسی کارایی روش کامپوزیتی به کار گرفته شده، ورق های لحیم تولید شده به این روش از نظر ریزساختاری، مکانیکی و فیزیکی مورد بررسی قرار گرفت. بررسی های ریزساختاری نشان دهنده توزیع مناسب ذرات تقویت کننده کبالت در زمینه لحیم بعد از 3 پاس ARB بود. همچنین، با افزایش درصد کبالت اندازه ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 در آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی از $9\mu m$ به $5\mu m$ در آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت کاهش یافت. در ادامه با بررسی تغییرات شکل و اندازه دانه های $\beta-Sn$ و وقوع و تسریع فرایندهای ترمیمی (بازیابی و تبلور مجدد) با حضور ذرات تقویت کننده کبالت در زمینه لحیم نشان داده شد. بررسی های خواص مکانیکی ورق های تولید شده، افت 20 درصدی استحکام مکانیکی اتصال بین لایه های ورق لحیم کامپوزتی را نشان داد. همچنین، نتایج آزمون کشش نشان دهنده افزایش 28 درصدی استحکام کششی و کاهش 31 درصدی ازدیاد طول آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت است. از طرفی نتایج آزمون DSC، تغییر ناچیز دمای ذوب ورق های آلیاژ لحیم کامپوزیتی را نشان داد.

کلمات کلیدی: لحیم های نرم بدون سرب؛ کامپوزیت های زمینه فلزی؛ ترکیبات بین فلزی؛ ریزساختار؛ اتصال نورد انباشتی.

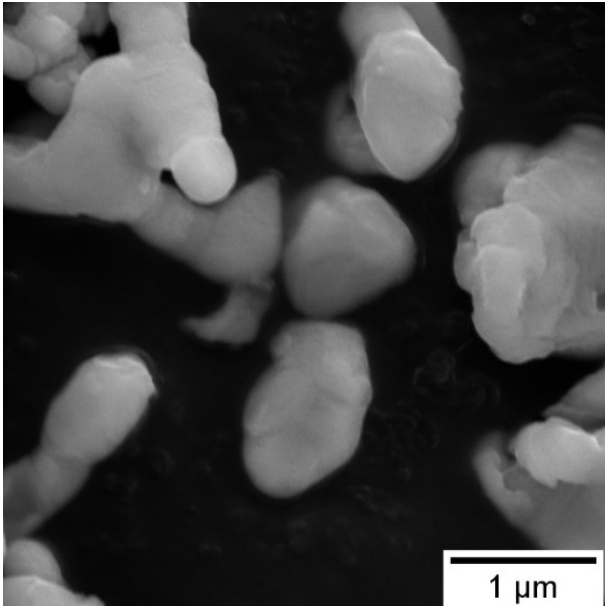
* نویسنده مسئول، پست الکترونیکی: مجتبی موحدی، m_movahedi@sharif.edu

1- مقدمه

جدیدترین رویکرد در افزایش اطمینان اتصالات الکتریکی، استفاده از مواد و ذرات تقویت کننده است. بهبود خواص فیزیکی و مکانیکی و همچنین کنترل تشکیل و رشد ترکیبات بین فلزی، زمینه ساز گسترش تحقیقات در زمینه کامپوزیت سازی شده است. در سال های اخیر تلاش شده است با استفاده از نانو ذرات و کامپوزیت سازی، خواص آلیاژ های لحیم نرم بدون

سرب بهبود داده شود و نتایج رضایت بخشی نیز گرفته شده است. داشتن توزیع یکنواخت از ذرات سخت در زمینه لحیم، طوری که خواص فیزیکی و مکانیکی را بهبود بخشد می تواند معیاری موفقیت آمیز برای رسیدن به آلیاژهای لحیم کامپوزیتی باشد. روش های افزودن ذرات تقویت کننده در زمینه آلیاژ لحیم نرم به منظور ایجاد آلیاژ لحیم نرم کامپوزیتی به دو دسته روش های اختلاط مکانیکی و روش های درجا تقسیم می شود.

اندازه $3\mu\text{m}$ استفاده گردید. در شکل (1) تصویر FE-SEM پودر میکروذرات کبالت آورده شده است.



شکل 1- تصویر FE-SEM از پودر میکروذرات کبالت.

در این تحقیق به منظور کامپوزیت‌سازی از فرایند اتصال نورد انباشتی (ARB) استفاده گردید. این فرایند توسط دستگاه نورد آزمایشگاهی با غلتک‌هایی به قطر 150mm ، سرعت چرخشی 28 RPM و بدون استفاده از روانکار به شرح ذیل انجام پذیرفت. شمش آلیاژ لحیم ذوب‌شده، در ابتدا به ورق‌هایی به ضخامت $300\ \mu\text{m}$ میکرومتر نورد گردید و سپس به ابعاد $20\text{mm} \times 100\text{mm}$ برش یافت. ورق‌های فوق به مدت 2 ساعت در دمای $100\text{ }^\circ\text{C}$ تحت عملیات حرارتی قرار گرفت. سپس سطوح آن توسط سمباده شماره 60 برس زده شد تا سطوحی با زبری $2/2\ \mu\text{m}$ برای اتصال نوردی ایجاد گردد. در ادامه نمونه‌ها با استون چربی‌زدایی شد. ذرات کبالت بعد از توزیع مناسب در استون، سریعاً روی یک سطح از ورق‌های لحیم اسپری شد.

سپس 5 ورق لحیم آلیاژی که شامل 4 ورق پوشش‌دار و 1 ورق بدون پوشش بود، بر روی هم قرار داده شد و ابتدا و انتهای آن‌ها، ثابت گردید. ورق‌های لحیم طوری روی هم قرار داده شدند که یک سطح پوشش‌دار در مجاورت یک سطح بدون پوشش قرار گیرد. در پایان این مرحله، بسته‌هایی حاوی

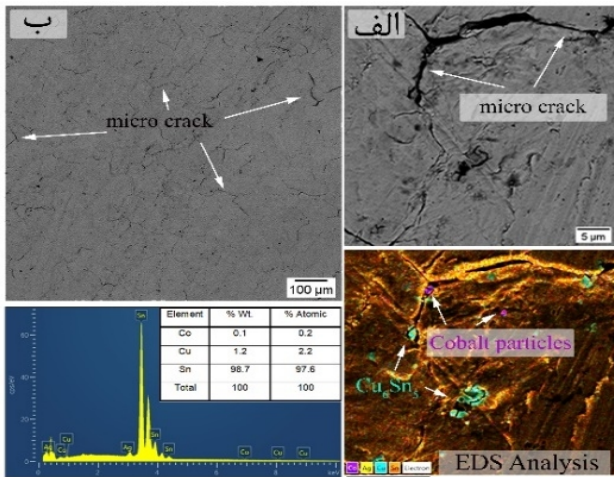
روش اختلاط مکانیکی عموماً با مکانیزم پراکنده سختی موجب استحکام‌بخشی آلیاژ لحیم می‌شود. درحالی‌که در روش درجا، رسوب سختی مکانیزم اصلی استحکام‌بخشی است. با رسوب سختی می‌توان مقاومت خزشی و خستگی حرارتی-مکانیکی آلیاژهای لحیم کامپوزیتی را بهبود بخشید [1].

همچنین روش دیگری که اخیراً مورد استفاده قرار گرفته است؛ اختلاط مکانیکی ذرات تقویت‌کننده با آلیاژ لحیم به صورت اتصال نورد انباشتی است. در تحقیقاتی که جهت کامپوزیت‌سازی آلیاژ لحیم از روش‌های تغییر شکل مکانیکی مانند نورد انباشتی، اکستروژن و غیره استفاده شده است؛ نتایج رضایت‌بخشی گزارش شده است. روشن قیاس و همکارانش [2] در پژوهشی با استفاده از فرایند ARB آلیاژ لحیم کامپوزیتی با ذرات نانومتری CeO_2 تولید کردند. همچنین، در پژوهش‌های دیگری تولید آلیاژهای لحیم کامپوزیتی با استفاده از فرایند ARB گزارش شده است [3, 4]. نرخ تولید بالا، توانایی تولید پیوسته، توانایی تولید ورق‌های کامپوزیتی نهایی، وجود تخلخل کم در فلزپرکننده کامپوزیتی و خرد شدن و توزیع یکنواخت ذرات تقویت‌کننده حین تولید، از مزایای استفاده از فرایند ARB در تولید آلیاژهای لحیم کامپوزیتی است. در این پژوهش سعی بر آن شد با بررسی ساختاری، خواص مکانیکی و فیزیکی ورق‌های لحیم کامپوزیتی تولیدشده به روش اتصال نورد انباشتی، کارایی این روش کامپوزیتی مورد بررسی قرار گیرد.

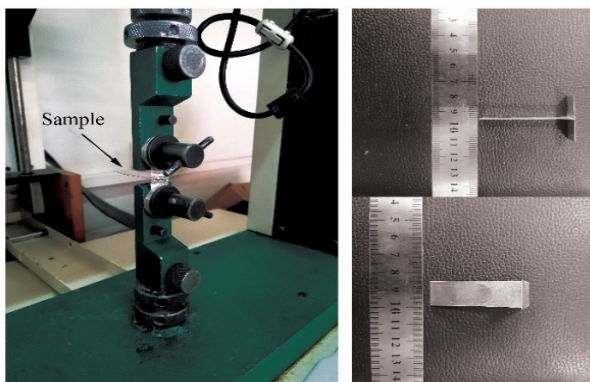
2- مواد و روش پژوهش

در این پژوهش ابتدا آلیاژ لحیم تجاری SAC0307 (ساخت شرکت آلمانی STANNOL) که به صورت یک رول سیمی بود تکه‌تکه شده و داخل بوته‌ای از جنس آلومینا، در کوره تیوبی تحت گاز محافظ آرگون در دمای $450\text{ }^\circ\text{C}$ به مدت 30 دقیقه ذوب و نگهداری شد و سپس تا دمای محیط سرد شد؛ در ادامه سطح شمش منجمد شده با سنگ براده برداری و آخال زدایی شد. در نهایت بعد از تمیزکاری با استون، شمش آلیاژ لحیم پایه آماده نورد و مراحل بعدی کامپوزیت‌سازی شد. در این تحقیق از میکروذرات کبالت (Co) با اندازه کمتر از $10\mu\text{m}$ و میانگین

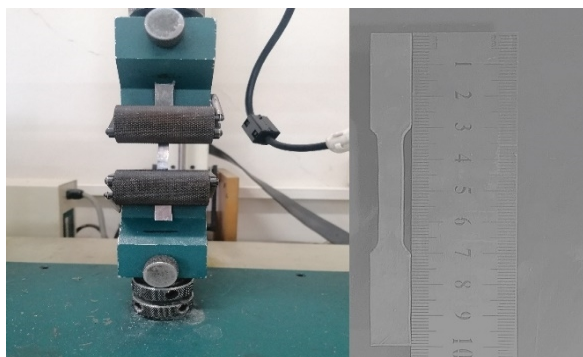
آزمون کشش روی نمونه‌ها با ابعادی مطابق استاندارد ASTM E8 با نرخ کرنش $0/01 \text{ s}^{-1}$ و در دمای اتاق مطابق شکل (4) انجام شد. لازم به ذکر است برای هر کامپوزیت، 3 نمونه کشش آماده‌سازی شد و مقادیر میانگین تنش تسلیم، استحکام نهایی کششی و کرنش شکست گزارش گردید.



شکل 2- تصویر FE-SEM به همراه آنالیز EDS از سطح ورق لحیم کامپوزیتی پس از 4 سیکل ARB.



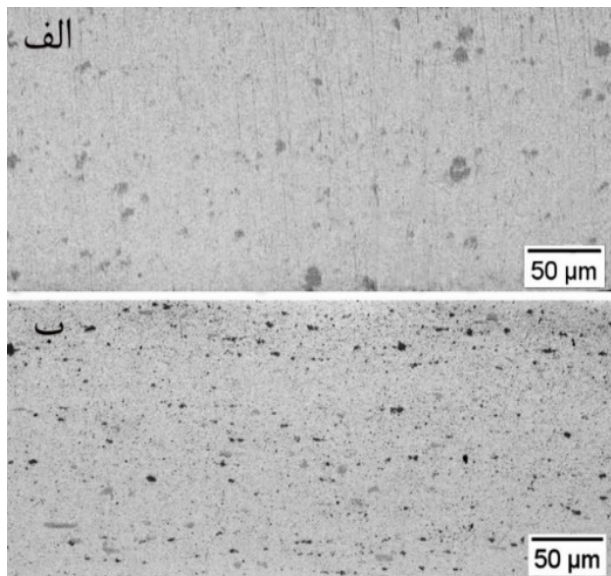
شکل 3- تصویر نمونه آماده شده و روش انجام آزمون Peel.



شکل 4- تصویر نمونه آماده شده و روش انجام آزمون کشش.

ورقه‌های لحیم و با درصدهای وزنی مختلف از پودر کبالت (0، 0/05، 0/15، 0/2، 0/4 و 1 درصد) ایجاد گردید. سپس این بسته‌های چندلایه در دمای اتاق با کاهش ضخامت 80% نورد گردید. این کاهش ضخامت برای ایجاد یک باند مناسب بین لایه‌ها و برحسب مقالات موجود در زمینه نورد قلع صورت پذیرفت [2، 5]. سپس ورق به دست آمده پس از برش زوائد و گوشه‌های ورق در دمای 100°C به مدت یک ساعت تحت عملیات حرارتی قرار گرفت. تسمه‌های ایجاد شده در مرحله قبل، به منظور بهبود توزیع ذرات در داخل زمینه، به دو نیم برش یافته و یک طرف آن‌ها برس زده و توسط استون چربی زدایی گردید. سپس با کاهش ضخامت 60% در دمای اتاق فرایند نورد اتصالی صورت پذیرفت. این مرحله یکبار دیگر تکرار گردید تا توزیع یکنواخت ذرات در داخل ورق لحیم ایجاد گردد. جهت ساخت لحیم کامپوزیتی به روش ARB متغیرهای ساخت طوری تعیین شد که میکروذرات کبالت با اندازه کمتر از 10 میکرومتر دچار تغییر شکل و مورفولوژی نشوند. در این پژوهش بعد از سه پاس نورد فویل نهایی شامل 20 لایه است و با توجه به اینکه ضخامت فویل نهایی 200 میکرومتر است، ضخامت هر لایه 10 میکرومتر می‌شود؛ بنابراین به دلیل سختی ARB بدون اینکه میکروذرات کبالت دچار تغییر شکل شوند در فویل آلیاژ لحیم فرورفته و با پاس‌های بعدی نورد توزیع و کامپوزیت‌سازی انجام پذیرفت. شایان ذکر است که با افزایش تعداد سیکل فرایند ARB توزیع ذرات بهتر می‌شود، هر چند که با افزایش تعداد سیکل، خطر ترک خوردن نمونه از گوشه‌ها زیاد شده و عملاً امکان پذیر نیست. در همین راستا با انجام یک سیکل دیگر (در کل 4 سیکل ARB) میکروذرات کبالت در سطح ورق و شیار ترک‌های ایجاد شده مشاهده شد (شکل 2). در نتیجه در این پژوهش سه سیکل ARB تعداد سیکل بهینه جهت همگن‌سازی توزیع ذرات بود. جهت بررسی استحکام بین لایه‌ها در ورق‌های تولید شده به روش فرایند ARB، از آزمون Peel استفاده شد. آزمون مورد نظر مطابق شکل (3) با سرعت 1 mm/min انجام شد.

اتمام فرایند ARB، توزیع مناسب میکروذرات کبالت در زمینه لحیم مشاهده شد.



شکل 5- تصاویر FE-SEM از توزیع ذرات تقویت کننده و ترکیبات بین فلزی خرد شده الف - آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی ب - آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت.

همچنین، در شکل (6) تصاویر FE-SEM و آنالیز EDS از ریزساختار زمینه ورق لحیم نهایی آلیاژهای لحیم کامپوزیتی با 0/05 و 1 درصد وزنی کبالت آورده شده است. همان‌طور که مشخص است در زمینه آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 0/05 درصد وزنی کبالت ترکیبات بین فلزی درشت‌تری مشاهده می‌شود. وجود ترکیبات بین فلزی درشت در ساختار زمینه لحیم باعث تمرکز تنش و کاهش استحکام مکانیکی زمینه لحیم می‌شود؛ ترد بودن ترکیبات بین فلزی و انسجام ترکیب بین فلزی با زمینه لحیم بر استحکام برشی تأثیرگذار است. لی و همکارانش [6] با بررسی استحکام برشی آلیاژ لحیم Sn-Cu در حضور ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 با اندازه 3 تا 12 میکرومتر نتیجه گرفتند که وجود میکرو ترک‌های بزرگ و کاهش تعداد ترکیبات بین فلزی به دلیل افزایش اندازه ترکیبات بین فلزی بر استحکام برشی تأثیر منفی دارد. در فرایند ARB ترکیبات بین فلزی درشت در زمینه شکسته شده و به ذرات کوچک‌تر خرد می‌شوند؛ در تحقیقی لیو و همکارانش [7] خرد شدن ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 در زمینه لحیم را گزارش کردند. همچنین، خرد شدن ترکیبات

همچنین، به منظور بررسی ریزساختار لحیم‌های کامپوزیتی و مشاهده نحوه توزیع فازهای مختلف و مورفولوژی آن‌ها، ورق‌های لحیم پس از برش داخل مانت سرد قرار داده شد و پس از سمباده زنی و پولیش نهایی، از محلول حکاکی با ترکیب (2% اسید هیدروکلریک، 5% اسید نیتریک و 93% متانول) جهت متالوگرافی نمونه‌ها استفاده گردید. بررسی‌های میکروسکپ نوری جهت توزیع دانه بندی و توزیع ترکیبات بین فلزی در زمینه لحیم کامپوزیتی انجام گرفت. همچنین، با استفاده از میکروسکپ الکترونی روبشی نشر میدانی (FE-SEM) مجهز به آنالیزور طیف‌سنج تفرقی اشعه ایکس (EDS) توزیع ترکیبات بین فلزی، ذرات کبالت و شکست نگاری سطوح شکست نمونه‌های آزمون Peel و کشش بررسی شد. جهت شناسایی فازی از آزمون XRD استفاده شد. در این پژوهش از نمونه‌های آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی و آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت، آزمون XRD گرفته شد. همچنین، با بهره‌گیری از دستگاه گرماسنج افتراقی (DSC)، نقطه ذوب، انجماد و میزان تحت تبرید لحیم کامپوزیتی محاسبه گردید. جهت انجام آزمایش تکه‌های ورق لحیم کامپوزیتی به وزن 8 mg آماده‌سازی گردید و تحت اتمسفر محافظ (گاز نیتروژن) به همراه نمونه مرجع آلومینای پودری شکل با نرخ گرمایش $15\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ انجام گرفت.

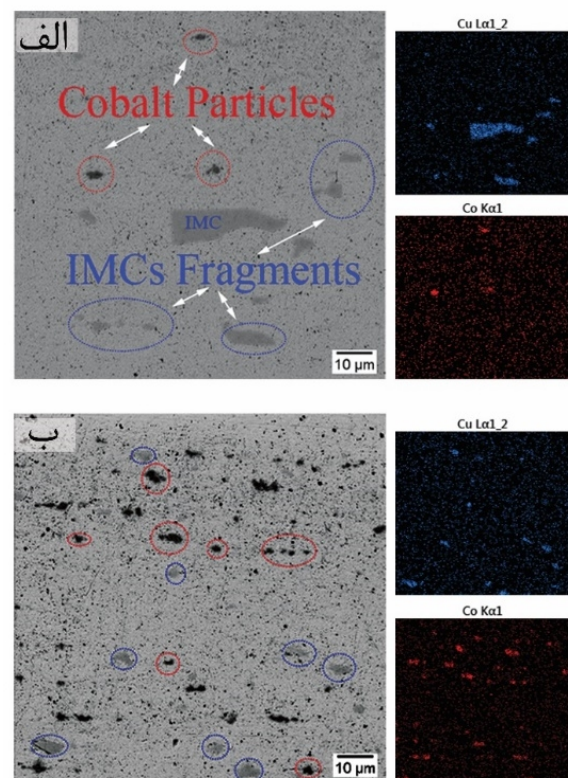
3- نتایج و بحث

3-1- بررسی توزیع ترکیبات بین فلزی و ذرات کبالت

در شکل (5) تصویر SEM از سطح مقطع ورق نهایی آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی (شکل 5-الف) و آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت (شکل 5-ب) آورده شد. در تصویر (شکل 5-ب) توزیع ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 (نقاط خاکستری) و ذرات تقویت کننده کبالت (نقاط سیاه) در زمینه آلیاژ لحیم، قابل مشاهده است. جهت مشاهده بهتر توزیع ذرات تقویت کننده در زمینه لحیم، توزیع میکروذرات کبالت در زمینه آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت بررسی شد؛ هرچند در تمامی نمونه‌های کامپوزیتی بعد از 3 پاس نورد و

غیر کامپوزیتی به 5 میکرومتر در نمونه آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت کاهش یافت. همچنین، با مقایسه اندازه ترکیبات بین فلزی در آلیاژهای لحیم غیر کامپوزیتی و کامپوزیتی مشاهده شد که با افزایش درصد وزنی کبالت اندازه ترکیبات بین فلزی کمتر شده است؛ دلیل این اتفاق را می‌توان به خرد شدن ترکیبات بین فلزی حین نورد ناشی از محدود شدن کرنش پلاستیک زمینه توسط میکروذرات کبالت و افزایش میزان کرنش اعمال شده به ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 دانست. البته بدیهی است که در حین شارش مجدد لحیم‌ها که عموماً روش‌های ذوبی است ریزساختار زمینه لحیم نیز تغییر خواهد کرد و در نتیجه توزیع و اندازه ترکیبات بین فلزی دستخوش تغییرات خواهد شد. در پژوهشی که هوانگ و همکارانش [8] جهت بررسی ریزساختار لحیم کامپوزیتی تولید شده به روش درجا انجام دادند، خرد شدن ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 با درصدهای مختلف کاهش سطح مقطع با استفاده از فرایند نورد مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که تا 90 درصد کاهش سطح مقطع اندازه ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 کاهش یافت و بعد از آن تغییر محسوسی نداشت. همچنین، هوانگ و همکارانش معتقدند که ترکیبات بین فلزی خرد شده ممکن است به دلیل نقطه ذوب بالاترشان نسبت به دمای لحیم‌کاری ذوب نشوند بلکه در زمان حرارت دهی تا حدودی ضخیم شوند؛ زیرا زمان لحیم‌کاری بسیار اندک و از حدود چند ثانیه تا چند دقیقه است. هر چند این ادعا توسط سایر محققین تأیید نشده، اما ممکن است تعدادی از ترکیبات بین فلزی پایدار در زمان کوتاه لحیم‌کاری از نقطه نظر ترمودینامیکی در مقابل ذوب شدن از خود مقاومت نشان دهند یا سینتیک انحلال ترکیبات بین فلزی حین فرایند لحیم‌کاری کند باشد. همچنین، اگر تکنیک‌های اتصال دهی حالت جامد استفاده شود، ترکیبات بین فلزی ریز در ساختار باقی می‌مانند که به‌عنوان ذرات تقویت‌کننده در زمینه لحیم در نظر گرفته می‌شوند. در این پژوهش ابتدا با افزودن 0/05 درصد وزنی کبالت به آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی تغییر محسوسی در اندازه ترکیبات بین فلزی خرد شده دیده نشد؛ در ادامه با افزودن 0/2 و 1 درصد وزنی کبالت به آلیاژ لحیم SAC اندازه ترکیبات

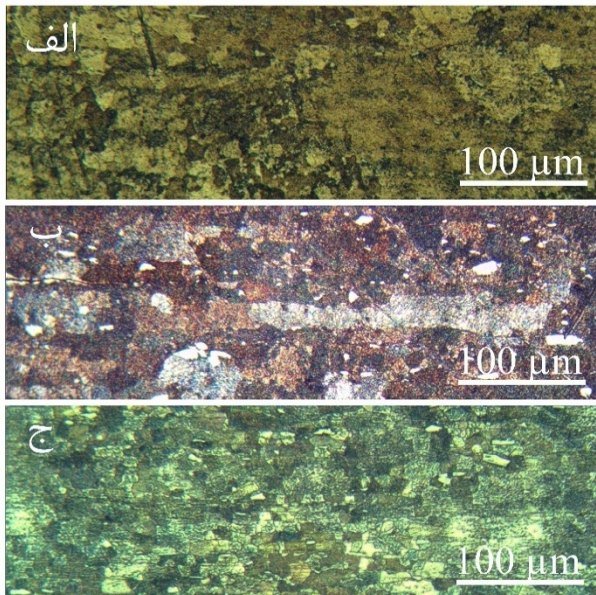
بین فلزی Ag_3Sn در حین فرایند ARB توسط روشن قیاس و همکارانش [2] گزارش شده است. در حین فرایند نورد انباشتی، نیرو و کرنش اعمال شده به ورق‌ها از طریق زمینه به ترکیبات بین فلزی منتقل می‌شود. از آنجا که این ترکیبات، ترد و تغییر شکل ناپذیر هستند، قابلیت تطابق و همراهی با تغییر فرم پلاستیک زمینه مجاور خود را ندارند؛ بنابراین ترکیبات بین فلزی به دلیل فشار ایجاد شده به وسیله نورد به ذرات کوچک‌تر خرد می‌شوند و توزیع یکنواخت‌تری از ترکیبات بین فلزی در زمینه لحیم ایجاد خواهد شد. میزان خرد شدن و اندازه نهایی این ترکیبات به میزان کرنش اعمال شده وابسته است.



شکل 6- تصاویر FE-SEM و آنالیز EDS از ریزساختار سطح مقطع ورق لحیم نهایی الف- آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 0/05 درصد وزنی کبالت و ب- آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت.

شکل (7) اندازه و تصویر Threshold ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 با استفاده از نرم‌افزار ImageJ را نشان می‌دهد. همان‌طور که در نمودار شکل (شکل 7-ب)) مشخص است، با افزایش درصد میکروذرات کبالت اندازه ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 خرد شده از 9 میکرومتر در نمونه آلیاژ لحیم

ARB پرداخته شده است. در شکل (8)، ریزساختار آلیاژهای لحیم کامپوزیتی و غیرکامپوزیتی نشان داده شده است. همانطور که در تصویر 8-الف مشاهده می‌شود قبل از فرایند ARB ریزساختار آلیاژ لحیم غیرکامپوزیتی شامل دانه‌های هم محور β -Sn است. در ادامه با انجام فرایند ARB روی آلیاژ لحیم نرم غیرکامپوزیتی، دانه‌های هم محور β -Sn به دانه‌های کشیده شده در راستای نورد تبدیل شد (8-ب). همچنین، بررسی ریزساختار ورق لحیم کامپوزیتی تولید شده با فرایند ARB (شکل 8-ج)، به مانند ساختار آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی قبل از فرایند ARB، دانه‌های هم محور β -Sn را نشان داد؛ با این تفاوت که اندازه دانه‌های β -Sn در آلیاژهای کامپوزیتی به شکل قابل ملاحظه‌ای کاهش یافته است. علت کاهش معنادار اندازه دانه‌های β -Sn را می‌توان به تسریع قوع فرایندهای بازیابی و تبلور مجدد ناشی از حضور ذرات تقویت کننده در زمینه لحیم دانست.

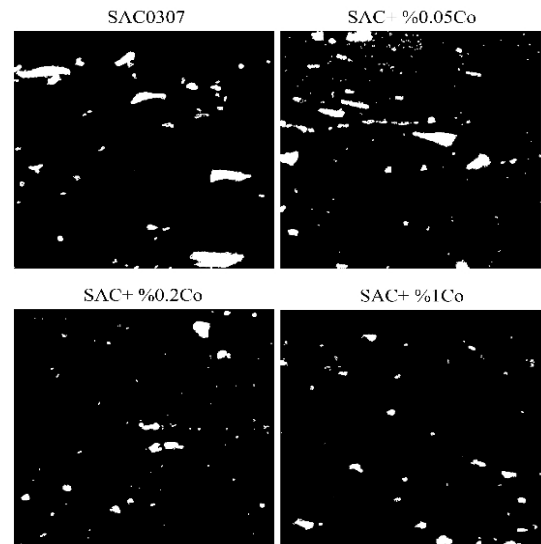


شکل 8- تصاویر پلاریزه از ریزساختار الف - آلیاژ لحیم غیرکامپوزیتی اولیه
ب - آلیاژ لحیم غیرکامپوزیتی بعد از فرایند ARB ج - آلیاژ لحیم کامپوزیتی
با 0/2 درصد وزنی کبالت بعد از فرایند ARB

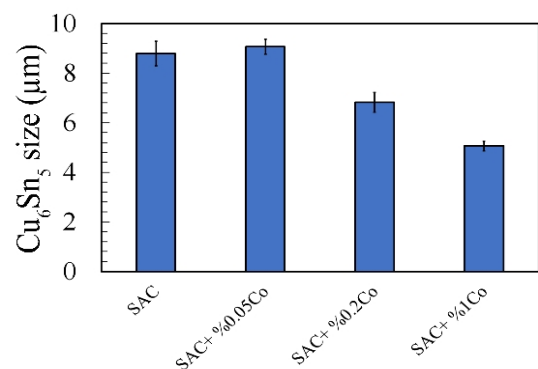
لازم به ذکر است، برای اکثر آلیاژهای لحیم کاری نسبت دمای اتاق به دمای ذوب آنها بر اساس مقیاس کلونین (دمای همولوگ) حدود 40% تا 60% است. لذا در دمای اتاق حین

بین فلزی به ترتیب 24 و 44 درصد کاهش یافت. همان‌طور که گزارش شد افزایش درصد وزنی کبالت در لحیم کامپوزیتی با کاهش اندازه ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 رابطه مستقیم دارد و رفته رفته شیب کاهش اندازه ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 با افزایش درصد وزنی کبالت در لحیم کامپوزیتی کاهش خواهد یافت. به عبارتی دیگر، علاوه بر اینکه درصد کاهش سطح مقطع در حین نورد بر خرد شدن ترکیبات بین فلزی مؤثر است، درصد وزنی ذرات تقویت کننده نیز تأثیرگذار خواهد بود.

الف



ب



شکل 7-الف - تصویر Threshold ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 ب - نمودار اندازه ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5

2-3- بررسی اندازه دانه های β -Sn در ریزساختار

برخلاف سایر تحقیقات قبلی، در این پژوهش به بررسی کاهش اندازه دانه‌های β -Sn آلیاژهای لحیم کامپوزیتی در اثر فرایند

3-3-آزمون XRD

شکل (9) نتایج آزمون XRD ورق نهایی آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی و آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت را نشان می‌دهد. در نمودار XRD مربوط به آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت، به علت درصد پایین میکروذرات کبالت (کمتر از 3%) پیک‌های مربوط به کبالت مشاهده نشد. پیک‌های مربوط به فازهای β -Sn و Cu_6Sn_5 در نمودار XRD مشخص شده است. با مقایسه شدت پیک‌ها در نمودار XRD آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی و آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت، کاهش شدت پیک‌ها در آلیاژ لحیم کامپوزیتی مشاهده شد. لازم به ذکر است β -Sn دارای 7 سیستم لغزش است؛ هرچند که هنوز تحقیقات جهت تکمیل مکانیزم و سیستم‌های لغزش β -Sn ادامه دارد. صفحات کریستالوگرافی (101) و (211) از صفحات مهم در سیستم لغزش β -Sn است. همان‌طور که تحقیقات و نتایج نشان می‌دهد صفحات لغزش در نمودار XRD بیشترین شدت پیک را به خود اختصاص می‌دهند؛ برای مثال در شبکه fcc صفحه (111) بیشترین شدت پیک را در نمودار XRD دارد. همان‌طور که از نمودار XRD آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی مشاهده می‌شود صفحه (101) در زاویه 32° بیشترین شدت پیک را دارد؛ در نتیجه صفحه (101) صفحه اصلی لغزش نابجایی‌ها در نمونه آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی ساخته شده به روش نورد انباشتی است. در نمونه آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت صفحه (211) در زاویه $44/9^\circ$ بیشترین شدت پیک را دارد که نشان‌دهنده این است که در نمونه کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت صفحه (211) صفحه اصلی لغزش نابجایی‌ها است. دلیل اینکه چرا صفحه اصلی لغزش از صفحه (101) در نمونه آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی به صفحه (211) در نمونه آلیاژ لحیم کامپوزیتی تغییر کرده را می‌توان به فرایند تبلور مجدد دینامیکی و افزایش چگالی نابجایی‌ها در اطراف ذرات تقویت‌کننده و ترکیبات بین‌فلزی در حین فرایند ARB مربوط دانست. احتمالاً با افزودن ذرات تقویت‌کننده و پراکندگی ترکیبات بین‌فلزی Cu_6Sn_5 در ساختار، سینتیک تبلور مجدد دینامیکی افزایش خواهد یافت.

فرایند ARB بازیابی دینامیکی، استاتیکی و آزاد شدن تنش‌های باقی‌مانده در ساختار اتفاق می‌افتد. به‌طور کلی می‌توان گفت که افزایش انرژی داخلی آلیاژ لحیم تغییر شکل یافته به‌عنوان نیروی محرک برای وقوع فرایندهای ترمیمی (بازیابی و تبلور مجدد) عمل می‌کند.

با افزایش تعداد سیکل‌های ARB، کرنش‌های بسیار بالا به ماده تحمیل می‌شود که انرژی داخلی لحیم زمینه را افزایش می‌دهد. به‌منظور کاهش این انرژی داخلی، سینتیک ترمیم تسریع می‌شود. این اتفاق قبلاً توسط لائرو و همکارانش [9] گزارش شده است.

بر طبق نتایج این گروه، مقادیر سختی آلیاژ لحیم بعد از تغییر شکل پلاستیک شدید پایین‌تر از مقدار آن پس از اعمال تغییر فرم خفیف‌تر بوده است. آن‌ها این امر را به بازیابی و تبلور مجدد دینامیک حین تغییر فرم پلاستیک شدید نسبت داده‌اند که در دمای اتاق و بدون هیچ‌گونه عملیات حرارتی اتفاق افتاده است. شایان‌ذکر است که وقوع هم‌زمان فرایندهای ترمیم کریستالی نظیر بازیابی و تبلور مجدد حین فرایند ARB برای تولید لحیم‌های کامپوزیتی سودمند خواهند بود؛ بدین‌صورت که با افزایش کارپذیری احتمال ترک خوردن کناره‌ایی کاهش خواهد یافت. علاوه بر این، وقوع تبلور مجدد حین فرایند ARB به بهبود کیفیت اتصال بین لایه‌ها نیز می‌انجامد [10].

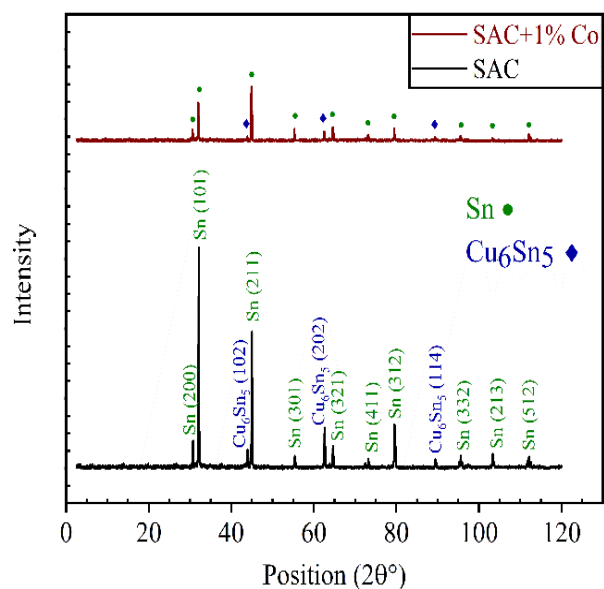
از طرفی دیگر بررسی ریزساختار ورق‌های لحیم کامپوزیتی و توزیع اندازه دانه‌های β -Sn در ساختار نشان از توزیع ذرات تقویت‌کننده است. به عبارتی دیگر، افزایش چگالی نابجایی‌ها در اطراف ذرات کبالت باعث وقوع فرایندهای ترمیمی در اطراف این ذرات می‌شود. بنابراین در صورت توزیع مناسب ذرات تقویت‌کننده، به‌طور یکنواخت در تمام ریزساختار کاهش اندازه دانه‌های β -Sn اتفاق خواهد افتاد. هرچند با در نظر گرفتن کاربرد اصلی لحیم‌ها که پس از شارش مجدد و انجماد ناشی از لحیم‌کاری است، آرایش نابجایی‌ها و مرزهای دانه که در حین فرایند ARB به وجود آمده است پس از شارش مجدد از بین خواهد رفت و تنها توزیع میکروذرات کبالت و ترکیبات بین‌فلزی خردشده حائز اهمیت است.

3-4- بررسی خواص مکانیکی

در شکل (10) استحکام بین لایه‌ها در ورق‌های لحیم غیر کامپوزیتی و کامپوزیتی بدست آمده از آزمون Peel گزارش شده است. در این آزمون استحکام بین لایه‌های اولیه (پاس اول ARB با 80% کاهش سطح مقطع) و لایه‌های ثانویه (پاس دوم ARB با 60% کاهش سطح مقطع) نشان داده شده است. با مقایسه نمودار آزمون Peel دو نمونه آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی و آلیاژ لحیم کامپوزیتی می‌توان نتیجه گرفت که در فرایند ARB با افزودن میکروذرات کبالت، استحکام بین لایه‌ها کاهش پیدا می‌کند. به عبارتی حضور ذرات تقویت‌کننده در بین لایه‌ها، مانع از اکستروژن شدن لایه‌ها در یکدیگر و در نتیجه افزایش استحکام اتصال می‌شود. در این پژوهش همان‌طور که در نتایج آزمون Peel مشاهده می‌شود با افزودن 0/2 درصد میکروذرات کبالت استحکام اتصال بین لایه‌های آلیاژ لحیم کامپوزیتی در فرایند ARB، حدود 20% کاهش یافت؛ به‌طور کلی با افزایش کسر حجمی ذرات، استحکام اتصال لایه‌ها کاهش می‌یابد. همچنین تأثیر ذرات تقویت‌کننده از نظر شکل، هندسه، اندازه ذرات و نوع ذره قابل بررسی است؛ در تحقیقات اثر اندازه ذرات این‌گونه بیان شده است که با کاهش اندازه ذرات از میکرومتری به نانومتری، استحکام اتصال ضعیف‌تری به دست می‌آید؛ همچنین در کامپوزیت‌سازی به روش ARB، با اندازه ذرات بزرگ‌تر (در مقیاس میکرومتری) در تعداد سیکل کمتری توزیع و یکپارچگی ذرات تقویت‌کننده در نمونه کامپوزیتی به‌دست آمده است [11, 12]. همین‌طور مشاهده شد استحکام اتصال بین لایه‌ها در سیکل اول با 80% کاهش سطح مقطع، نسبت به سیکل دوم با 60% کاهش سطح مقطع بیشتر است. با وجود اینکه جهت بهبود اتصال بین لایه‌ها بین دو سیکل اول و دوم آئیل میانی انجام شد؛ ولی به نظر می‌رسد میزان کرنش در سیکل‌های فرایند ARB تأثیر بیشتری بر استحکام اتصال بین لایه‌ها دارد.

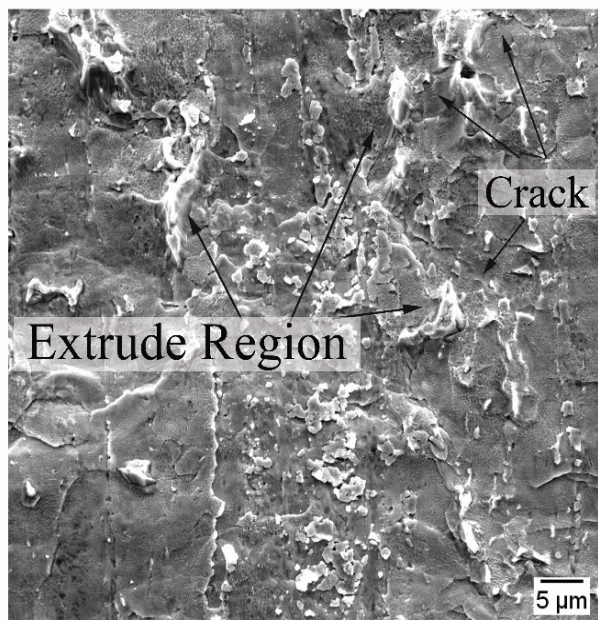
در شکل (11) تصویر FE-SEM سطح شکست نمونه آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی بعد از آزمون Peel نشان داده شده است. در تصویر ترک‌ها و نواحی اکستروژن لایه‌ها در یکدیگر به‌خوبی مشاهده می‌شود. در فرایند ARB مکانیزم اتصال بین لایه‌ها،

تبلور مجدد مکانیکی در مکان‌هایی با چگالی نابجایی‌های بالا مستعدتر است بنابراین در نمونه آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت به دلیل وجود چگالی نابجایی بالا در نزدیکی ذرات تقویت‌کننده و ترکیبات بین‌فلزی احتمال تبلور مجدد دینامیکی افزایش پیدا می‌کند. همچنین ذرات تقویت‌کننده و ترکیبات بین‌فلزی ریز که در ساختار پراکنده شده‌اند مانع از رشد دانه‌های تبلور مجدد شده می‌شوند. بنابراین، نمونه آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت دارای چگالی بالای مرزهای با زاویه بالا است و باعث کاهش شدت پیک‌ها در نمودار XRD می‌شود. از طرفی با فرض اینکه تبلور مجدد اتفاق نیفتاده باشد افزایش چگالی نابجایی‌ها در صفحه لغزش (101) می‌تواند باعث کاهش شدت پیک صفحه (101) در نمودار XRD شود؛ بنابراین با در نظر گرفتن اینکه هم تبلور مجدد و هم افزایش چگالی نابجایی‌ها در صفحات ترجیحی کریستالوگرافی باعث کاهش شدت XRD می‌شود؛ شدت پیک صفحه (101) نمونه آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت علاوه بر اینکه نسبت به پیک متناظر در نمونه آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی کاهش یافته نسبت به پیک صفحه (211) نمونه آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت نیز کاهش یافته است.



شکل 9- نتایج آزمون XRD نمونه آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی و آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت.

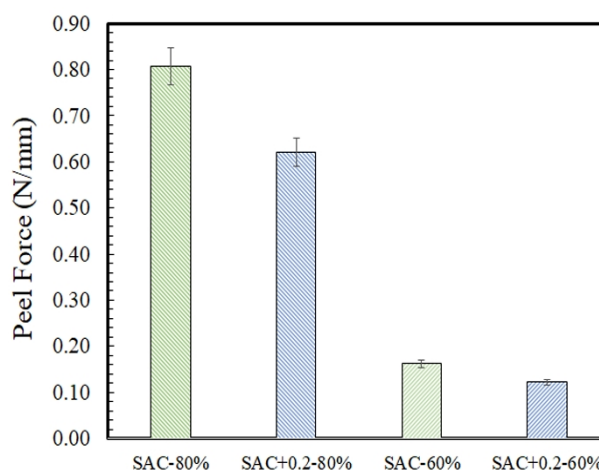
31 درصد کاهش ازدیاد طول را نشان داد. در پژوهشی که آلیاژ لحیم کامپوزیتی Sn-3.5Ag-0.7Cu با نانو ذرات CeO₂ بعد از 14 سیکل ARB کامپوزیت‌سازی شده بود، حداکثر 42% افزایش استحکام کششی نسبت به نمونه بدون نانو ذرات گزارش شد [2].



شکل 11-تصویر FE-SEM از سطح شکست نمونه بعد از انجام آزمون Peel.

در پژوهش دیگری تأثیر اندازه ذرات این‌گونه گزارش شده است که با کاهش اندازه ذرات تقویت‌کننده حداکثر استحکام کششی ورق ARB شده در تعداد سیکل بالاتری اتفاق خواهد افتاد [11]. همچنین، در شکل (13) تصویر سطح شکست نمونه‌های آلیاژ لحیم غیرکامپوزیتی و آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت بعد از آزمون کشش نشان داده شده است. در تصاویر سطح شکست، جدایش محل اتصال بین لایه‌ها در سیکل دوم و سوم فرایند ARB، قابل مشاهده است. همچنین، با مقایسه سطح شکست نمونه آلیاژ لحیم غیرکامپوزیتی و آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت، مشاهده شد که اتصال بین 5 لایه در سیکل اول فرایند ARB در نمونه آلیاژ لحیم غیرکامپوزیتی نسبت به نمونه آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت بهتر انجام شده است. همان‌طور که نتایج آزمون

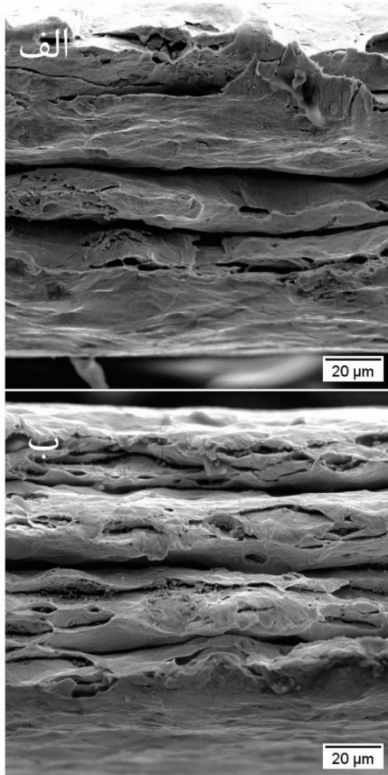
شکست فیلم اکسیدی ایجاد شده روی سطح لایه (Crack) و اکستروود شدن مواد تشکیل‌دهنده لایه‌ها در داخل یکدیگر (Extrude Region) در حین تغییر شکل پلاستیک با استفاده از نورد عنوان می‌شود. همچنین، ذرات تقویت‌کننده اسپری شده روی سطح لایه‌ها از مناطق اکستروود شده، وارد لایه‌ها شده و در نهایت ورق کامپوزیتی به دست می‌آید. استحکام کافی بین لایه‌های ورق لحیم تولیدشده، لازمه انجام فرایند های بعدی شامل برش ورق‌ها و استفاده در لحیم‌کاری شارش مجدد است. همچنین، استحکام اتصال مناسب، معیاری از موفقیت‌آمیز بودن کامپوزیت‌سازی به روش ARB است. هرچند استحکام اتصال بین لایه‌ها تا زمان لحیم‌کاری شارش مجدد حائز اهمیت است و پس از ذوب ورق لحیم تولیدشده، توزیع مجدد ذرات تقویت‌کننده اتفاق خواهد افتاد. لازم به ذکر است استحکام اتصال پس از لحیم‌کاری شارش مجدد در پژوهش قبلی [13] انجام گرفت. نتایج بدست آمده از آزمون کشش-برش نشان‌دهنده افزایش 38 درصدی استحکام اتصال در آلیاژ لحیم با 0/4 درصد وزنی کبالت است.



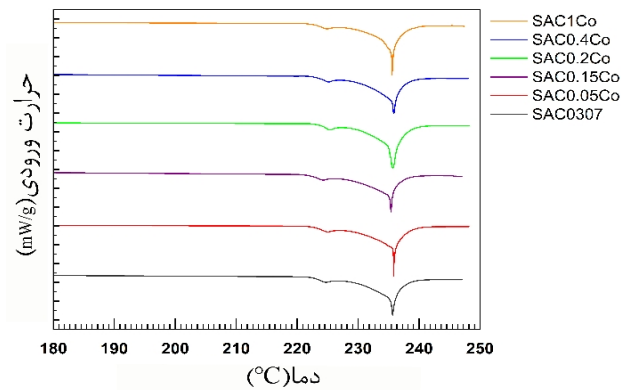
شکل 10-نتایج بدست آمده از آزمون Peel.

شکل (12) نمودار استحکام کششی ورق‌های لحیم غیرکامپوزیتی و کامپوزیتی تولید شده به روش ARB را نشان می‌دهد. با افزایش درصد وزنی کبالت استحکام کششی افزایش و ازدیاد طول کاهش یافت؛ به‌طوری‌که لحیم کامپوزیتی با 1 درصد وزنی کبالت 28 درصد افزایش استحکام کششی و

از 27 درجه به 23 درجه در آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 0/2 درصد وزنی کبالت کاهش یافت.



شکل 13- تصاویر FE-SEM از سطح شکست آلیاژ لحیم غیرکامپوزیتی و کامپوزیتی با 0/2 درصد وزنی کبالت پس از انجام آزمون کشش.

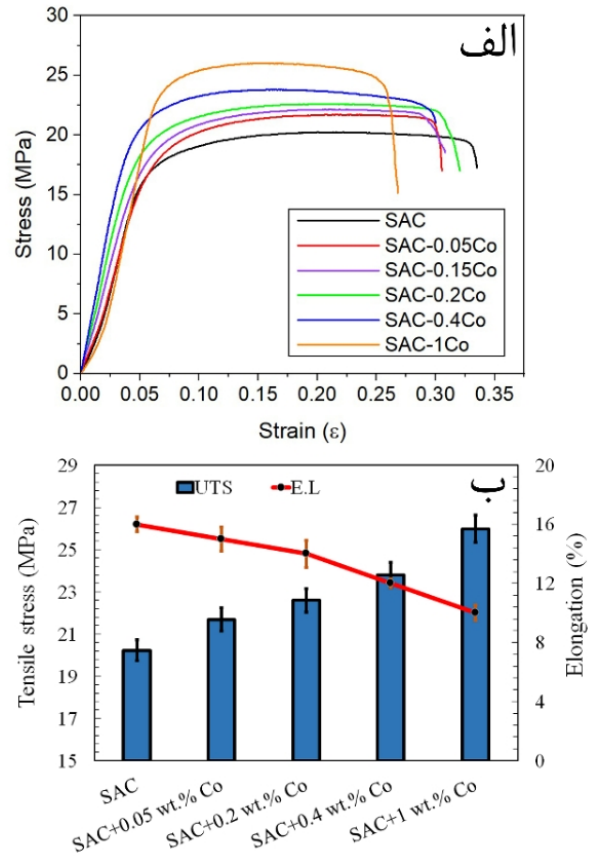


شکل 14- پیک دمای ذوب بدست آمده از آنالیز DSC برای آلیاژهای لحیم غیرکامپوزیتی و کامپوزیتی.

4- نتیجه گیری

در این پژوهش آلیاژ لحیم نرم بدون سرب SAC0307 با استفاده از میکرو ذرات کبالت و به روش اتصال نورد انباشتی کامپوزیت سازی شد. در ادامه با بررسی ریزساختاری، خواص

Peel نشان داد با افزودن میکروذرات کبالت، اتصال بین لایه‌ها ضعیف‌تر می‌شود که این موضوع در سطح شکست آزمون کشش نیز مشهود است.



شکل 12- الف - نمودار تنش - کرنش و ب - استحکام نهایی کشش و درصد ازدیاد طول آلیاژهای لحیم کامپوزیتی و غیرکامپوزیتی بدست آمده از آزمون کشش.

3-5- بررسی خواص فیزیکی

با توجه به نتایج آزمون DSC، دمای ذوب آلیاژ لحیم غیرکامپوزیتی 235/7 درجه سانتی‌گراد است. همچنین، دمای ذوب آلیاژهای لحیم کامپوزیتی 235 ± 1 درجه سانتی‌گراد بدست آمد؛ بنابراین می‌توان نتیجه گرفت میکروذرات کبالت روی نقطه ذوب آلیاژ لحیم تأثیر ناچیزی داشته است. شکل (14) پیک مربوط به دمای ذوب آلیاژ لحیم غیرکامپوزیتی و آلیاژهای لحیم کامپوزیتی را نشان می‌دهد. همچنین در پژوهش قبلی [13] انجام شده، ترشوندگی آلیاژهای لحیم کامپوزیتی مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد با کامپوزیتی کردن زاویه ترشوندگی

غیر کامپوزیتی نشان داد.

- نتایج آزمون DSC نشان دهنده تأثیر نامحسوس کامپوزیت‌سازی روی دمای ذوب آلیاژهای لحیم کامپوزیتی است.

منابع

- 1-Shen, J. and Y.C. Chan, *Research advances in nano-composite solders*. Microelectronics Reliability, 2009. 49(3): p. 223-234.
- 2-Roshanghias, A., et al., *Ceria reinforced nanocomposite solder foils fabricated by accumulative roll bonding process*. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2012. 23: p. 1698-1704.
- 3-Hosseini, M., et al., *Manufacturing and characterization of Sn-Cu/SiO₂np lead-free nanocomposite solder by accumulative roll bonding (ARB) process*. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2022. 33(17): p. 13516-13530.
- 4-Wattanakornphaiboon, A., R. Canyook, and K. Fakpan, *Effect of SnO₂ reinforcement on creep property of Sn-Ag-Cu solders*. Materials Today: Proceedings, 2018. 5(3): p. 9213-9219.
- 5-Li, L., K. Nagai, and F. Yin, *Progress in cold roll bonding of metals*. Science and technology of advanced materials, 2008. 9(2): p. 023001.
- 6-Li, Z., et al., *The Influence of Primary Cu 6 Sn 5 Size on the Shear Impact Properties of Sn-Cu/Cu BGA Joints*. Journal of Electronic Materials, 2018. 47: p. 84-95.
- 7-Liu, G., et al., *Microstructure and mechanical properties of Sn-Cu alloys for detonating and explosive cords*. Materials Science and Technology, 2017. 33(16): p. 1907-1918.
- 8-Hwang, S.-Y., J.-W. Lee, and Z.-H. Lee, *Microstructure of a lead-free composite solder produced by an in-situ process*. Journal of electronic materials, 2002. 31: p. 1304-1308.
- 9-Lauro, P., et al., *Effects of mechanical deformation and annealing on the microstructure and hardness of Pb-free solders*. Journal of Electronic materials, 2003. 32: p. 1432-1440.
- 10-Wang, Q., et al., *An ultrafine-grained AZ31 magnesium alloy sheet with enhanced superplasticity prepared by accumulative roll bonding*. Journal of Iron and Steel Research, International, 2007. 14(5): p. 167-172.
- 11-Jamaati, R., et al., *Effect of particle size on microstructure and mechanical properties of composites produced by ARB process*. Materials Science and Engineering: A, 2011. 528(4-5): p. 2143-2148.
- 12-Yousefian, R., E. Emadoddin, and S. Baharnezhad, *Manufacturing of the aluminum metal-matrix composite reinforced with micro-and nanoparticles of TiO₂ through accumulative roll bonding process (ARB)*. Reviews on Advanced Materials Science, 2018. 55(1): p. 1-11.
- 13-Nourmohammadi, M., et al., *Investigation of microstructure and mechanical properties of lead free composite solder containing cobalt microparticles produced by accumulative roll bonding*.

مکانیکی و فیزیکی کارایی این روش کامپوزیت‌سازی مورد بررسی قرار گرفت. نتایج حاصل از بررسی‌های انجام شده به شرح زیر است:

- با توجه به اندازه میکروذرات کبالت (کمتر از $10\mu\text{m}$)، 3 پاس ARB تعداد پاس بهینه برای کامپوزیت‌سازی تعیین شد.

- توزیع مناسبی از میکرو ذرات کبالت بعد از 3 پاس ARB مشاهده شد.

- با افزایش درصد کبالت در زمینه لحیم، کرنش زمینه لحیم محدودتر شده و کرنش اعمال شده به ترکیبات بین فازی افزایش یافت؛ در نتیجه اندازه ترکیبات بین فلزی Cu_6Sn_5 از $9\mu\text{m}$ در آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی به $5\mu\text{m}$ در آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد کبالت کاهش یافت.

- بررسی ریزساختاری آلیاژ لحیم اولیه (ریخته‌گری شده)، آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی (بعد از انجام ARB) و آلیاژ لحیم کامپوزیتی نشان دهنده وقوع فرایندهای ترمیمی ناشی از فرایند ARB است. به عبارتی دیگر، دانه‌های هم محور آلیاژ لحیم اولیه بعد از فرایند ARB به دانه‌های کشیده شده در راستای نورد در آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی تبدیل شد. از طرفی در آلیاژ لحیم کامپوزیتی دانه‌های هم محور آلیاژ لحیم اولیه به دانه‌های هم محور با اندازه دانه فوق العاده کوچک‌تر تبدیل شد.

- پیک‌های شناسایی شده در آزمون XRD مربوط به فازهای $\beta\text{-Sn}$ و Cu_6Sn_5 بود. همچنین، کاهش شدت پیک‌ها در آلیاژ لحیم کامپوزیتی نشان دهنده افزایش چگالی نابجایی‌ها در آلیاژ لحیم کامپوزیتی است.

- نتایج آزمون Peel نشان دهنده افت 20% استحکام لایه‌های ورق لحیم کامپوزیتی به دلیل حضور میکرو ذرات در بین لایه‌ها است. همچنین، شکست‌نگاری سطوح شکست نمونه‌های آزمون کشش نشان دهنده اتصال بهتر لایه‌های ورق آلیاژ لحیم غیر کامپوزیتی است.

- با افزایش درصد کبالت استحکام کششی و درصد ازدیاد طول ورق‌های آلیاژ لحیم کامپوزیتی به ترتیب افزایش و کاهش یافت. آلیاژ لحیم کامپوزیتی با 1 درصد کبالت 28% افزایش استحکام کشش و 31% کاهش ازدیاد طول نسبت به آلیاژ لحیم