



Au-30%Si 合金熔体与石墨的润湿性及铺展动力学

杨 媛, 王婷婷, 朱定一, 任永彬

(福州大学 材料科学与工程学院, 福州 350116)

摘要: 采用改良座滴法在真空条件下研究 Au-30%Si(摩尔分数)合金与石墨在 1373~1473 K 温度范围内的润湿性及铺展动力学。结果表明: 随着温度升高, 该体系润湿性得到改善, $T=1373$ K 时, 体系终态接触角高达 100° , 呈不润湿; 当 $T \geq 1393$ K 时, 随着温度的升高, 接触角的变化速率明显加快, 接触角减小至 16° , 呈现良好的润湿性。界面反应产物 SiC 的形成使得固/液界面能不断降低, 为润湿铺展提供驱动力。通过建立新的反应润湿动力学模型, 从能量角度阐述润湿铺展机制, 预测体系固/液界面能随反应时间的延长呈指数关系降低。在反应控制阶段, 理论计算与实验结果一致。

关键词: Au-Si 合金; 石墨; 润湿性; 动力学

中图分类号: TG146.3; O647

文献标志码: A

高温润湿铺展动力学是一个相对较新的研究领域, 由于高温润湿实验条件(气氛控制, 平衡状态, 界面反应等)很难精确控制使得润湿过程动力学分析成为一个难题^[1]。国内外对于金属/陶瓷、金属/半导体反应体系的铺展动力学进行了大量研究, 提出了一些具有代表性的动力学模型, 主要有 BLAKE 等^[2]的分子动力学模型、de GENNES^[3]的半经验公式、MORTENSN 等^[4]的扩散控制铺展模型以及 EUSTATHOPOULOS 等^[5]的反应控制铺展模型。这些模型均以直接测得的接触角 θ 或铺展半径 R 与时间的函数关系为表达式, 没有明确提出润湿驱动力的解释, 亦没有探讨驱动力的表达方式。BLAKE^[6]在近期研究中发现这一问题并指出可以将 $\sigma_{LV}(\cos \theta_e - \cos \theta)$ 作为驱动力的表达式, 虽然可以在理论上表述接触角的变化情况, 但仍无法从固/液界面能的变化阐明润湿驱动力的产生和反应润湿的作用机理。本文作者认为, 上述模型并非润湿铺展的本质描述, 驱动力本质上应与界面能变化有关。

金属或其合金与陶瓷增强体的润湿性已成为当今冶金法制备复合材料的研究热点^[7], 而金属与碳的复合材料由于具有良好的导电、导热性能近年来备受电触头、散热器、发电机等领域的青睐^[8]。通常大多数纯金属与碳的润湿性很差, 例如 Au/C 体系的润湿角在 $120^\circ \sim 135^\circ$ ^[9]。由于活性元素是影响润湿性的重要因

素^[10], Si 与碳及陶瓷具有较好的润湿性^[11], 因此, 常将 Si 作为活性元素加入不润湿的金属/碳体系以改善其润湿性。但 Si 的加入是否能改善 Au/碳体系的润湿性, 尚未见文献报道。根据文献[9]提供的计算金属-Si-C 体系 Si 与 C 发生反应的临界摩尔分数的方程:

$$X_{Si}^I = \exp \left(\frac{\Delta G_{f(SiC)}^\ominus - \Delta \bar{H}_{Si(M)}}{RT} \right) \quad (1)$$

式中: $\Delta G_{f(SiC)}^\ominus$ 为碳化硅的标准生成吉布斯自由能; $\Delta \bar{H}_{Si(M)}$ 为硅原子与金属原子的混合焓; R 为摩尔气体常数; T 为热力学温度, 当 $T=1373$ K 时, $\Delta G_{f(SiC)}^\ominus = -62.448$ kJ/mol^[12], $\Delta \bar{H}_{Si(M)} = -48$ kJ/mol^[9], 可得 $X_{Si}^I \approx 0.28$, 所以取 $X_{Si} > 0.28$ 即可保证 Si 与 C 发生反应。本文作者重点研究 Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系的润湿性及界面反应, 以界面反应热力学变化为基础, 建立了铺展动力学模型, 并预测了该体系的铺展动力学过程。

1 实验

实验采用的基板是由日本东阳碳素有限公司生产的高纯石墨(99.99%, 质量分数)板, 尺寸为 $5 \text{ mm} \times 20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ 。在进行润湿实验之前, 对石墨基板进行打磨处理并抛光至镜面。合金选用硅含量为 30%(摩

尔分数)的 Au-Si 合金。将高纯 Au(99.999%, 质量分数), Si(99.995%, 质量分数)取出适量, 去氧化膜, 按既定的配比称取质量, 将称好的所有金属放入丙酮中用超声波清洗 2 次, 取出后迅速放入钛吸氧的真空电弧炉中反复熔炼 4 次, 以确保合金成分均匀。用金刚石切割机将熔炼好的 Au-Si 合金切割成小立方体, 每个小立方体的质量约为 150 mg。实验时, 将石墨板和切好的合金一起置于丙酮中用超声波清洗 3 遍以去除表面污渍。

实验采用改良的座滴法在真空气氛下分别测定不同温度下 Au-30%Si(摩尔分数)合金与石墨基板的润湿性, 实验装置和实验的详细步骤如文献[13]所述。先将清洗干净的石墨基板放置于炉内的氧化铝底座上并调整底座到水平位置, 金属暂时存储于炉子外的不锈钢管中。然后在室温下抽真空至 9×10^{-4} Pa。待设备加热到实验温度后, 储料管内的合金通过与炉腔内部连接的 Al_2O_3 管滴落至石墨基板上, 同时用高分辨率 CCD 数码相机摄取图像, 当液滴形状基本不变时, 拍摄结束。

润湿实验结束后样品随炉冷, 利用轴对称液滴形状分析(ADSA)软件处理润湿过程中采集到的图像, 获得合金液滴与石墨基板的接触角。将部分试样沿液滴中心垂直界面切开, 样品的一半经研磨抛光后制成金相试样, 另一半交替放置于 $\text{HCl}+\text{HNO}_3$ (HCl 与 HNO_3 的体积比为 2:1)、 $\text{HF}+\text{HNO}_3$ (HF 与 HNO_3 的体积比为 1:3)的混合溶液中, 分别腐蚀掉液滴合金中的 Au 和 Si 以露出界面区域。将腐蚀好的试样利用 XRD 分析仪对界面物相进行检测, 并利用扫描电镜(SEM)观察样品的界面微观结构。

2 结果与讨论

2.1 润湿行为与界面反应

图 1 所示为 1373~1473 K 温度范围内 Au-30%Si(摩尔分数)合金在石墨基板上接触角的变化曲线。其中图 1(a)所示为接触角随时间的变化曲线, 由图 1(a)可以看出, 润湿过程大致可以分为 3 个阶段(除 $T=1373$ K 时): I) 初始平衡阶段; II) 反应控制阶段; III) 扩散控制阶段。DEZELLUS 等^[14]在研究典型的反应控制体系 Cu-Si/ C_v 和 Ni-Si/ C_v 时也有类似的阶段划分。图 1(a)中 t_N 为第 II 与第 III 阶段的转折点, θ_N 为转折点处的接触角。在较低温度 1373 K 时, 接触角变化十分缓慢, 最终呈不润湿状态。然而, 当温度升高到 1393 K 时, 接触角的变化速率明显加快, 体系迅速由不润湿转变为润湿。随着温度上升, 第 I 阶段的持续时间相差不大, 接触角均在初始几秒内保持不变; 第

II 阶段的铺展速率受温度的影响显著, 温度越高接触角变化越快, t_N 逐渐提前。图 1(b)所示为初始接触角和终态接触角随温度的变化曲线, 如图 1(b)所示, 实验温度由 1373 K 提高到 1473 K, 终态接触角由 100° 减小至 16° , 表明升高温度能够显著改善 Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系的润湿性。

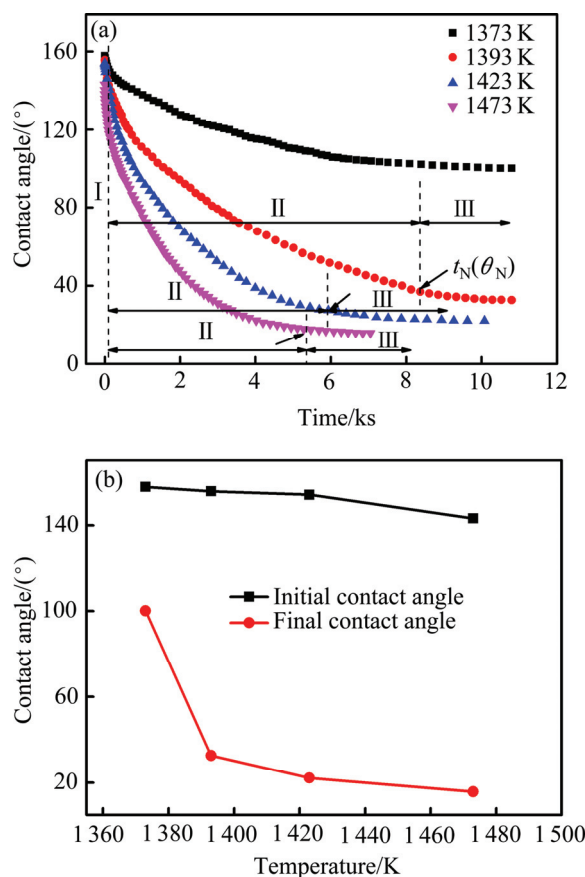


图 1 Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系接触角随时间和温度的变化曲线

Fig. 1 Variations of contact angle with time(a) and temperature(b) for Au-30%Si (mole fraction)/graphite system

反应控制阶段主要包括以下 3 个过程^[14]:

- 1) 石墨基板在液体合金中溶解;
- 2) 被液体合金溶解的 C 从溶解表面小范围扩散至生长表面;
- 3) 原子在生长界面附着。

在 Si 熔点附近, C 在液态 Si 中的饱和溶解度不到 1×10^{-3} (摩尔分数)^[9], 因此, 体系在铺展过程中可能发生如下化学反应:



在 1373 K 时, 碳化硅的标准生成吉布斯自由能 $\Delta G_{\text{f(SiC)}}^\ominus = -62.448 \text{ kJ/mol} < 0$ ^[12], 即反应在热力学上可以发生。图 2 所示为体系在 1473 K 反应润湿后的界面

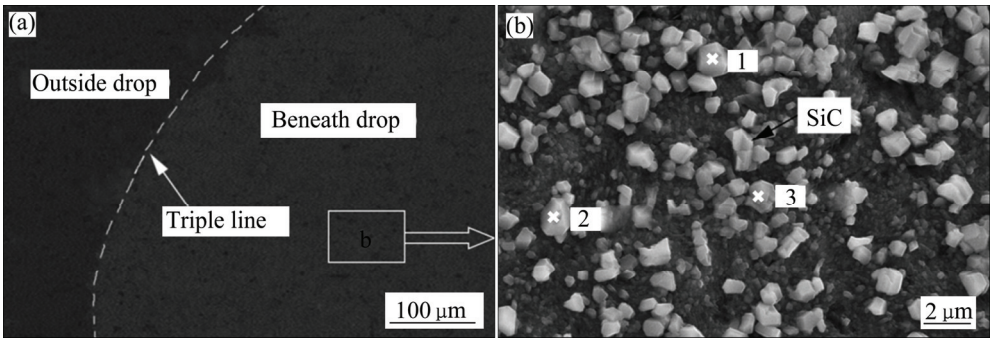


图 2 1473 K 时体系腐蚀掉液滴后的形貌

Fig. 2 Morphologies of system after removal of solidified drop after wetting at 1473 K: (a) Overall interface; (b) Central interface

显微组织的形貌。图 2(a)所示为显微组织的整体形貌,可以看出,液滴下面有明显的反应产物,三相线清晰可见;图 2(b)所示为靠近中心区域(b 区)的组织形貌,可以看出,颗粒状物质较为连续,但没有完全覆盖基板表面。对图 2(b)中的 3 个白色颗粒进行能谱分析,其结果如表 1 所列,结果表明颗粒状物质由 Si 和 C 组成,各颗粒中 Si 和 C 的含量与 SiC 中 Si 与 C 的理论含量(Si 70%; C 30%, 质量分数)非常接近。图 3 所示为界面反应产物层的 XRD 谱,结合图 3 分析可知,界面产物为 SiC(见图 2(b)中箭头所指白色颗粒)。反应润湿体系的终态接触角或平衡态接触角实际为合金熔体在反应产物上的接触角^[15],文献[16–17]中关于 Au-Si/SiC 体系最终润湿角的报道在 0°~59°,本研究的结果与此接近。近年来,不少学者认为硅及硅合金在光滑的玻璃碳或石墨表面的铺展速率依赖于界面处 SiC 的生成^[5, 18],正是由于界面处生成 SiC 使得 Au-30%Si/石墨体系的固/液界面能不断降低,从而使体系达到良好的润湿性。

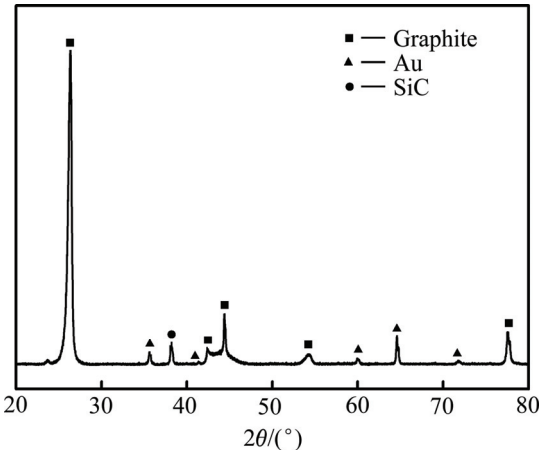


图 3 石墨基板表面反应层的 XRD 谱

Fig. 3 XRD pattern for reaction layer of graphite surface

表 1 图 2(b)中各点能谱分析结果

Table 1 EDS analysis of different points shown in Fig. 2(b)

Point No.	Mass fraction/%	
	C	Si
1	32.73	67.27
2	31.54	68.46
3	33.63	66.37

2.2 固/液界面能的计算

如前文所述, Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系的润湿行为包括石墨基板的溶解、硅原子在界面处的吸附、界面产物的形成等过程,这些反应使得固/液界面变得更加错综复杂,固/液界面的连续变化引起了固/液界面能的连续变化。朱定一等^[19–20]通过理论推导建立了新的固/液界面能的热力学计算方法,认为反应润湿动态平衡过程中的固/液界面能按如下规律变化:

$$\sigma_{SL} = \frac{\sigma_{LV}}{2} \left(\sqrt{1 + \sin^2 \theta} - \cos \theta \right), 0 \leq \theta \leq 180^\circ \quad (3)$$

式中: σ_{SL} 和 σ_{LV} 分别表示固/液、液/气界面能; θ 为接触角。

根据式(3)可求解各体系反应过程中固/液界面能随时间的变化值。图 4 所示为 Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系固/液界面能随时间的变化,计算过程中用到的液体表面张力如表 2 所列。由图 4 可知,整个过程 σ_{SL} 变化速率逐渐减小,到扩散控制阶段几乎为一条直线。这是由于在反应控制阶段, Si 原子不断与熔解的 C 原子发生反应生成 SiC, 逐渐形成新的界面, 因此, 固/液界面能随时间变化较快。随着反应的进行, 反应产物逐渐增多, 阻碍了原子的扩散速率, 从而界面处的反应减缓, 固/液界面能的变化速率逐渐变慢,

直至新的界面完全形成, 固/液界面能基本不变。Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系的初始态固/液界面能为 873~894 mJ/m², 终态固/液界面能为 33~707 mJ/m²; 随着实验温度的升高, 初始态固/液界面能的变化不大; 当温度由 1373 K 上升至 1393 K 时, 终态固/液界面能迅速降低, 之后随着温度的升高变化较小。

表 2 Au-30%Si(摩尔分数)液体合金表面能^[21]

Table 2 Surface energy of Au-30%Si (mole fraction) liquid metal^[21]

T/K	$\sigma_{LV}/(\text{mJ}\cdot\text{m}^{-2})$
1373	896
1393	894
1423	892
1473	888

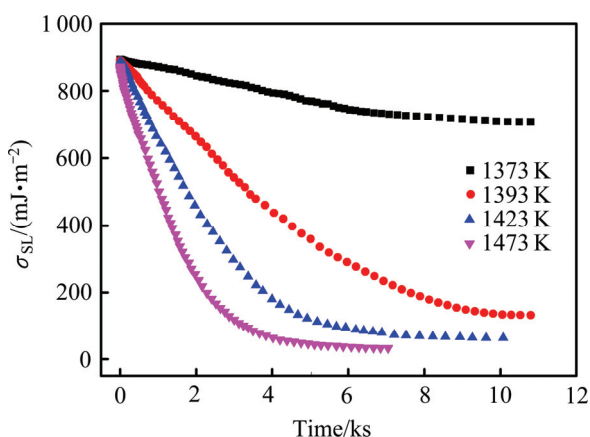


图 4 Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系在不同温度下固/液界面能随时间的变化

Fig. 4 Change of solid/liquid surface energy for Au-30%Si (mole fraction)/graphite system at different temperatures with time

2.3 铺展动力学

DEZELLUS 等^[5]通过分析接触角与时间的变化关系, 建立了反应控制阶段的动力学模型:

$$\cos \theta_e - \cos \theta_d = (\cos \theta_e - \cos \theta_0) \exp(-k_r t) \quad (4)$$

式中: θ_e 为平衡态接触角; θ_d 为瞬时态接触角; θ_0 为初始态接触角; k_r 为动力学常数。该模型与试验结果较为一致, 但它尚不能直接显示润湿驱动力的热力学本质。

对于反应润湿体系, 液体能在固体表面润湿铺展的根本原因是固/液界面能的不断降低。在建立固/液

界面能变化速率 $d\sigma_{SL}(t)/dt$ 时, 认为液滴铺展的实际驱动力为 $d\sigma_{SL}(t)$, 其表达式为

$$\Delta\sigma_{SL}(t) = \sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e} \quad (5)$$

该表达式原理与 $\cos \theta_e - \cos \theta_d$ 相似, 式中 $\sigma_{SL}(t)$ 和 $\sigma_{SL,e}$ 分别为瞬时态、终态固/液界面能。可见, $\Delta\sigma_{SL}(t)$ 越大, 反应润湿的驱动力越大, 当 $\Delta\sigma_{SL}(t) \rightarrow 0$ 时, 液滴在固体表面停止铺展, 驱动力的最大值 $\Delta\sigma_{SL,\max}$ 为反应初始态界面能与终态界面能之差, 该值可以通过反应热力学表达式(3)求解。实验研究发现, 界面能的变化速率还与界面上化学反应速率 v 有关, 界面反应越快, 则固/液界面能的变化速率越快。因此, 可将固/液界面能的变化速率描述为

$$\frac{d\sigma_{SL}(t)}{dt} = [\sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e}]v \quad (6)$$

本研究结果表明, 反应润湿体系由界面化学反应控制, 则固/液界面反应速率为

$$-v = kc_A^{n_1} c_B^{n_2} \quad (7)$$

实验中的反应体系为一级反应, 则有

$$-v = kc \quad (8)$$

式中: c 为液相中参与反应的原子浓度; k 为反应速率常数, 遵循 Arrhenius 方程:

$$k = k_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (9)$$

式中: k_0 为指前因子; E_a 为表观活化能; R 为摩尔气体常数; T 为热力学温度。结合式(6)和式(8)可得:

$$\frac{d\sigma_{SL}(t)}{dt} = -[\sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e}]kc \quad (10)$$

将式(10)积分可得:

$$\int_{\sigma_{SL,0}}^{\sigma_{SL}(t)} \frac{1}{\sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e}} d\sigma_{SL}(t) = \int_0^t -kc dt \quad (11)$$

式中: $\sigma_{SL,0}$ 为初始态固/液界面能, 简化后得到:

$$\ln[\sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e}] = \ln[\sigma_{SL,0} - \sigma_{SL,e}] - kct \quad (12)$$

进一步变形得到固/液界面能随时间变化的动力学方程:

$$\sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e} = (\sigma_{SL,0} - \sigma_{SL,e}) \exp(-kct) \quad (13)$$

即

$$\sigma_{SL}(t) = (\sigma_{SL,0} - \sigma_{SL,e}) \exp(-kct) + \sigma_{SL,e} \quad (14)$$

根据式(12),可知 $\sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e}$ 取自然对数与时间成线性关系,斜率为 $-kc$ 。由式(13)和(14)可见,固/液界面能随反应时间呈指数降低关系(如图4所示),ZHANG等^[22]在研究 Al/石墨、Al-Si/石墨体系的固/液界面能时也有类似的发现。

先利用式(3)计算出反应润湿体系固/液界面能随时间变化的关系曲线,然后通过式(12)得到体系的铺展动力学曲线。由反应控制阶段拟合后的直线斜率 $-kc$, 获得动力学常数 k 。为计算方便,可将活性原子浓度 c 近似取合金中活性原子的摩尔分数,本研究中取 0.3。然后将动力学常数取对数与温度的倒数做函数关系(即 $\ln k$ 与 $1/T$),应用 Arrhenius 关系,即式(9),可获得反应润湿体系反应的表现活化能。

图5(a)~(c)所示为 Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系在各实验温度下的动力学曲线。由图5(a)~(c)可以看出,不同温度的动力学曲线均大致可以分为两段,对应于上文提到的反应控制阶段和扩散控制阶段。且反应控制阶段均可用本研究建立的动力学模型描述,动

力学曲线接近于直线,其拟合优度决定系数均大于 0.98($R^2 > 0.98$)。拟合结果表明,液滴铺展的实际驱动力为固/液界面能的变化 $\Delta\sigma_{SL}(t)$ 。值得注意的是,当 $\sigma_{SL}(t) = \sigma_{SL,e}$ 时, $\ln[\sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e}]$ 趋近于无穷小,为了获得好的关系曲线,这里取终态值 $\sigma_{SL,e}$ 略小于计算值。图5(d)所示为 $\ln k$ 与 $1/T$ 的关系曲线,由此获得 Au-Si/石墨体系反应的表现活化能为 241 kJ/mol,此值比熔融金属中的扩散激活能(约为几十 kJ/mol)^[23] 高一个数量级,这与该阶段的液滴铺展是由反应控制的假设一致。DEZELLUS等^[14]发现,碳在熔融的硅中溶解反应的表现活化能几乎不受合金基体的类型和合金中 Si 原子活度的影响。不同的硅合金与玻璃态碳反应的表现活化能为 250~300 kJ/mol 之间^[14, 24],由于 DEZELLUS等^[14]采用传统座滴法进行润湿实验,样品在加热过程中表面会发生一定程度的氧化,使得其所测的表现活化能偏大,而本研究中通过改良座滴法避免样品在加热过程中被氧化,可见,本研究中计算的 Au-Si/石墨体系反应的表现活化能基本准确。

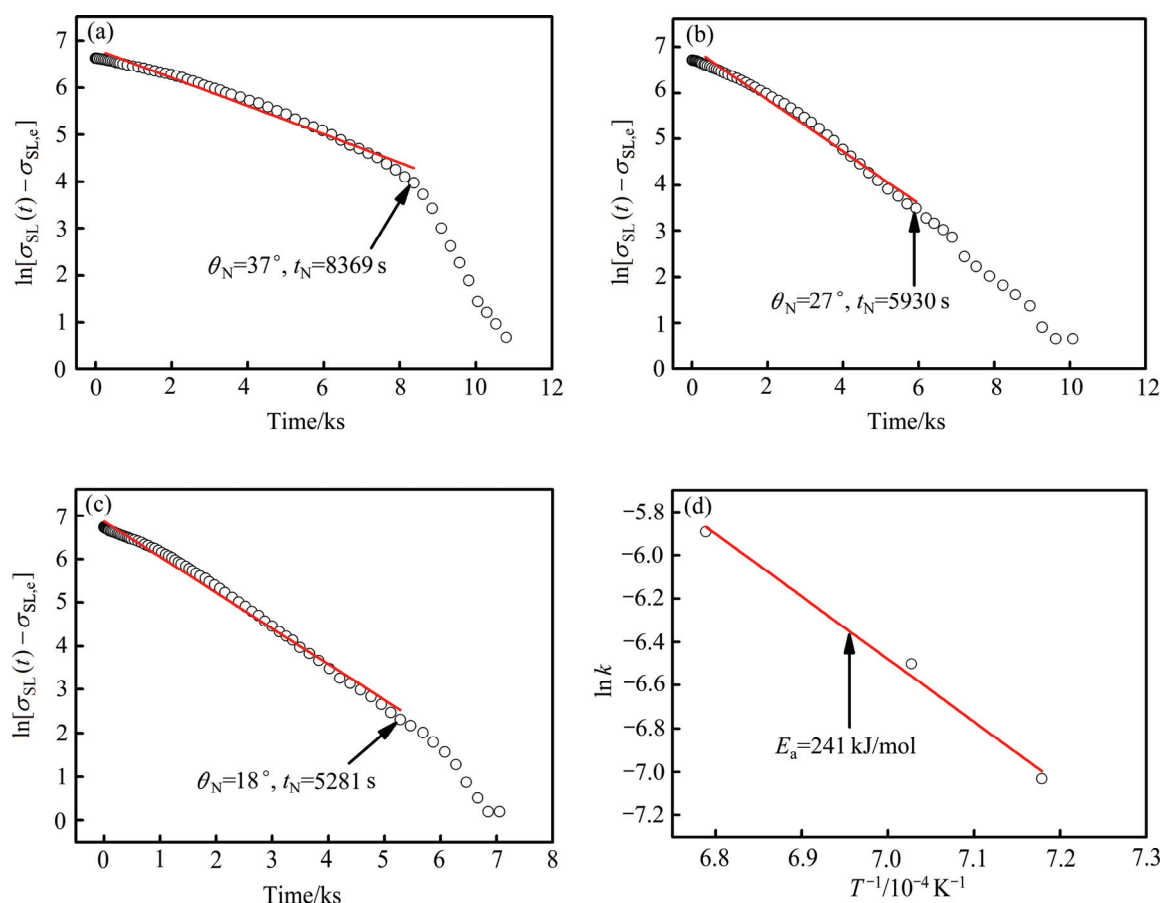


图5 Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系在不同温度下 $\ln[\sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e}]$ 与时间 t 的关系

Fig. 5 Relationship between Napierian logarithm of $\ln[\sigma_{SL}(t) - \sigma_{SL,e}]$ and time for Au-30%Si (mole fraction) alloy on graphite at different temperatures: (a) 1393 K; (b) 1423 K; (c) 1473 K; (d) Arrhenius plot of $\ln k$ vs T^{-1} for calculation of activation energy

3 结论

1) Au-30%Si(摩尔分数)/石墨体系在 1373~1473 K 温度范围内的初始接触角和终态接触角分别位于 158°~143°和 100°~16°之间;两者都随着温度的升高而减小。在 $T=1373\text{ K}$ 时,体系终态接触角高达 100°,呈不润湿状态;当 $T\geq 1393\text{ K}$ 时,接触角的变化速率明显加快,体系迅速由不润湿转变为润湿。

2) Au-30%Si(摩尔分数)/石墨润湿过程中,活性元素 Si 与石墨溶解产生的 C 发生反应并在金属/石墨界面处生成较为连续的 SiC 层,形成新的金属/陶瓷界面,从而减小了固/液界面能,改善润湿性。

3) 固/液界面能的变化为反应润湿提供驱动力,由此提出新的反应润湿动力学模型,从能量角度阐述了润湿铺展机制,并预测固/液界面能随反应时间的延长呈指数关系降低。根据本研究建立的动力学方程计算出 Au-Si/石墨体系反应的表现活化能为 241 kJ/mol。

REFERENCES

- [1] BENHASSINE M, SAIZ E, TOMSIA A P, DE CONINCK J. Nonreactive wetting kinetics of binary alloys: A molecular dynamics study[J]. *Acta Materialia*, 2011, 59(3): 1087–1094.
- [2] BLAKE T D, HAYNES J M. Kinetics of liquid/liquid displacement[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1969, 30(3): 421–423.
- [3] de GENNES P G. Wetting: statics and dynamics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 1985, 57(3): 827.
- [4] MORTENSEN A, DREVET B, EUSTATHOPOULOS N. Kinetics of diffusion-limited spreading of sessile drops in reactive wetting[J]. *Scripta Materialia*, 1997, 36(6): 645–651.
- [5] DEZELLUS O, HODAJ F, EUSTATHOPOULOS N. Chemical reaction-limited spreading: the triple line velocity versus contact angle relation [J]. *Acta Materialia*, 2002, 50 (19): 4741–4753.
- [6] BLAKE T D. Forced wetting of a reactive surface[J]. *Advances in Colloid and Interface Science*, 2012, 179/182: 22–28.
- [7] 李春新, 刘许旸, 吕学伟, 邱贵宝, 白晨光. Ti-Al 系合金熔体与 TiN 润湿行为 [J]. *中国有色金属学报*, 2014, 24(12): 3022–3030.
LI Chun-xin, LIU Xu-yang, LÜ Xue-wei, QIU Gui-bao, BAI Chen-guang. Wetting behavior of melting Ti-Al alloys with TiN[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2014, 24(12): 3022–3030.
- [8] MOLINA J M, RODRIGUEZ-GUERRERO A, BAHRAINI M, WEBER L, NARCISO J, RODRIGUEZ-REINOSO F, LOUIS E, MORTENSEN A. Infiltration of graphite preforms with Al-Si eutectic alloy and mercury[J]. *Scripta Materialia*, 2007, 56(11): 991–994.
- [9] EUSTATHOPOULOS N, NICHOLAS M G, DREVET B. Wettability at high temperatures[M]. Oxford, Britain: Pergamon, 1999: 263–266, 323–342, 397–398.
- [10] 陈晓燕, 周亦胄, 张朝威, 金涛, 孙晓峰. Hf 对一种高温合金与陶瓷材料润湿性及界面反应的影响[J]. *金属学报*, 2014, 50(8): 1019–1024.
CHEN Xiao-yan, ZHOU Yi-zhou, ZHANG Chao-wei, JIN Tao, SUN Xiao-feng. Effect of Hf on the interfacial reaction between a nickel base superalloy and a ceramic material[J]. *Acta Metallurgica Sinica*, 2014, 50(8): 1019–1024.
- [11] DREVET B, EUSTATHOPOULOS N. Wetting of ceramics by molten silicon and silicon alloys: A review[J]. *Journal of Materials Science*, 2012, 47(24): 8247–8260.
- [12] BARIN I. Thermochemical data of pure substances[M]. 3rd ed. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH, 1995: 1488–1490.
- [13] 丛晓霜. Al 及其合金与多晶 α -SiC 陶瓷的润湿性及界面结构 [D]. 长春: 吉林大学, 2014: 16–18.
CONG Xiao-shuang. Wettability of silicon carbide by molten aluminum or aluminum alloys and their interfacial microstructures[D]. Changchun: Jilin University, 2014: 16–18.
- [14] DEZELLUS O, HODAJ F, EUSTATHOPOULOS N. Progress in modelling of chemical-reaction limited wetting[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2003, 23(15): 2797–2803.
- [15] EUSTATHOPOULOS N. Dynamics of wetting in reactive metal/ceramic systems[J]. *Acta Materialia*, 1998, 46(7): 2319–2327.
- [16] DREVET B, KALOGEROPOULOU S, EUSTATHOPOULOS N. Wettability and interfacial bonding in Au-Si/SiC system[J]. *Acta Metallurgica et Materialia*, 1993, 41(11): 3119–3126.
- [17] NAIDICH Y V, ZHURAVLEV V, KRASOVSKAYA N. The wettability of silicon carbide by Au-Si alloys[J]. *Materials Science and Engineering A*, 1998, 245(2): 293–299.
- [18] EUSTATHOPOULOS N. Wetting by liquid metals-application in materials processing: The contribution of the Grenoble Group[J]. *Metals*, 2015, 5(1): 350–370.
- [19] 朱定一, 戴品强, 罗晓斌, 张远超. 润湿性表征体系及液固界面张力计算的新方法(I) [J]. *科学技术与工程*, 2007, 7(13): 3057–3062.
ZHU Ding-yi, DAI Pin-qiang, LUO Xiao-bin, ZHANG Yuan-chao. Novel characterization of wetting properties and the calculation of liquid-solid interface tension(I) [J]. *Science Technology and Engineering*, 2007, 7(13): 3057–3062.
- [20] 朱定一, 廖选茂, 戴品强. 反应型固液界面能的理论表征与

- 计算[J]. 科学通报, 2013, 58(2): 181–187.
- ZHU Ding-yi, LIAO Xuan-mao, DAI Pin-qiang. Theoretical analysis of reactive solid-liquid interfacial energies[J]. Chinese Science Bulletin, 2013, 58(2): 181–187.
- [21] NAIDICH Y, PEREVERTAILO V, OBUSCHAK L. Density and surface tension of alloys of the systems Au-Si and Au-Ge[J]. Poroshkovaya Metall, 1975, 149(5): 73–75.
- [22] ZHANG D, ZHU D Y, ZHANG T, WANG Q F. Kinetics of reactive of graphite by liquid Al and Cu-Si alloys[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2015, 25(7): 2473–2480.
- [23] CALDERON N R, VOYTOVYCH R, NARCISO J, EUSTATHOPOULOS N. Pressureless infiltration versus wetting in AlSi/graphite system[J]. Journal of Materials Science, 2010, 45(16): 4345–4350.
- [24] BOUGIOURI V, VOYTOVYCH R, DEZELLUS O, EUSTATHOPOULOS N. Wetting and reactivity in Ni-Si/C system: experiments versus model predictions[J]. Journal of Materials Science, 2007, 42(6): 2016–2023.

Wettability and spreading dynamics of melting Au-30%Si alloys with graphite

YANG Yuan, WANG Ting-ting, ZHU Ding-yi, REN Yong-bin

(College of Materials Science and Engineering, Fuzhou University, Fuzhou 350116, China)

Abstract: The wettability and spreading dynamics of Au-30%Si (mole fraction) alloys on graphite were studied using a modified sessile drop method under vacuum at 1373–1473 K. The results show that the wettability improves with the temperature increasing. The alloy is non-wetting with graphite and final contact angle as large as 100° at 1373 K. When $T \geq 1393$ K, the contact angle accelerates apparently with the temperature increasing, and finally presents an excellent wettability with contact angle decreasing to 16° . The formation of interfacial reaction products SiC resulting in the continuous decrease of solid-liquid interfacial energy, which provides the driving force for wetting and spreading. A spreading kinetic model is established, which explains the wetting mechanism from the angle of energy and predicts the solid-liquid interfacial energy decreasing with time in exponential relationship. The experimental results are in accord with the theoretical calculation in reaction-limited spreading.

Key words: Au-Si alloy; graphite; wettability; dynamics

Foundation item: Project(2011J01292) supported by the Natural Science Foundation of Fujian Province, China

Received date: 2015-08-25; **Accepted date:** 2015-12-28

Corresponding author: ZHU Ding-yi; Tel: +86-591-22866540; E-mail: zdy7081@163.com

(编辑 李艳红)