



SiC 颗粒级配对 SiC_p/Al 复合材料 微观结构和性能的影响

王武杰¹, 洪雨², 刘家琴^{1,3,4}, 吴玉程^{1,2,3,4}

1. 合肥工业大学 工业与装备技术研究院, 合肥 230009;
2. 合肥工业大学 材料科学与工程学院, 合肥 230009;
3. 有色金属与加工技术国家地方联合工程研究中心, 合肥 230009;
4. 安徽省有色金属材料与加工工程实验室, 合肥 230009

摘要: 采用放电等离子烧结技术制备高体积分数 SiC_p/Al 复合材料, 研究 SiC 颗粒级配对复合材料微观结构、热和力学性能的影响。结果表明: 放电等离子烧结制备的 SiC_p/Al 复合材料由 SiC 和 Al 两相组成, SiC 颗粒基本呈均匀随机分布、层次明显, SiC 颗粒与 Al 基体界面结合强度高且无 Al₄C₃ 等脆性相生成。在双粒径级配的 SiC_p/Al 复合材料中, SiC 体积分数从 50% 增加到 65% 时, 其相对密度从 99.93% 下降到 96.40%; 其中, 当 SiC 体积分数为 60% 时, 复合材料的相对密度、热导率、平均热膨胀系数(50~400 °C)和抗弯强度分别为 99.19%、227.5 W/(m·K)、 $9.77 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 和 364.7 MPa。

关键词: SiC_p/Al 复合材料; 放电等离子烧结; 颗粒级配; 热导率; 热膨胀系数; 抗弯强度

文章编号: 1004-0609(2018)-12-2523-08

中图分类号: TG146

文献标志码: A

近年来, 随着电子器件功率密度不断增加及其尺寸不断减小, 传统的电子封装材料, 例如 W-Cu、AlN 和 Kovar 合金等, 已经不能满足高热耗散和低热应力的要求, 发展具有高导热、可剪裁热膨胀的高性能电子封装材料的需求变得越来越紧迫^[1-4]。高体积分数 SiC_p/Al 复合材料作为一种新型电子封装材料, 可通过复合材料组分设计以满足电子封装材料低密度、高强度、高热导率(Thermal conductivity, TC)、低热膨胀系数(Thermal expansion coefficient, CTE)的要求, SiC_p/Al 复合材料的应具有高 TC(150~200 W/(m·K))和低 CTE($6 \times 10^{-6} \sim 10 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$), 抗弯强度大于 310 MPa, 密度在 3.0 g/cm³ 左右, 因而用作新型电子封装材料拥有广阔的应用前景^[5-6]。

在制备高体积分数 SiC_p/Al 复合材料过程中, SiC 颗粒与熔融 Al 的润湿性较差, 增加温度可在一定程度上改善 Al-SiC 的润湿性, 但也会生成脆性相和水解相 Al₄C₃^[7]。因此, 如何抑制复合材料中界面反应的发生, 成为制备高性能 SiC_p/Al 复合材料过程中一个至关重要的问题。采用无压浸渗法时需要对颗粒表面进行处理或者在基体合金中添加额外的 Si 或 Mg 抑制有害的

界面反应^[8-9], 工艺复杂且生产效率低。粉末冶金法是一种低成本、高效率制备 SiC_p/Al 复合材料方法, 可通过合理的制备工艺和颗粒级配, 制备出组织致密、SiC 体积分数超过 60% 的复合材料。其中, 放电等离子烧结(Spark plasma sintering, SPS)是一种制备高性能、高体积分数 SiC_p/Al 复合材料的快速烧结技术, 该技术烧结温度低、升温速度快、烧结时间短、生产效率高, 能够有效抑制界面反应的发生^[10-13]。

本文采用 SPS 制备高体积分数 SiC_p/Al 复合材料, 探究 SiC 颗粒级配对复合材料的微观结构、热性能和力学性能的影响。通过采用 SPS 成功地制备出致密的高体积分数 SiC_p/Al 复合材料, 同时抑制 Al₄C₃ 等脆性相在 Al-SiC 界面处的生成。本研究结果对于高性能 SiC_p/Al 复合材料的颗粒级配具有重要的指导意义。

1 实验

1.1 材料制备

复合材料的基体为 6061Al 合金粉末, 平均粒径为

8 μm , 纯度 $>99.9\%$; 增强体为 F220-SiC 和 F500-SiC 两种 SiC 颗粒, 平均粒径分别为 76 μm 和 16 μm , 纯度 $>99\%$ 。F220-SiC 颗粒被用来制备单粒径复合材料, 其中 SiC 体积分数为 40%~60%; F220/F500-SiC 混合颗粒被用来制备双粒径级配复合材料, 其中 SiC 体积分数为 50%~65%, F220 与 F500 质量比 3:1; 并对单粒径和双粒径级配的样品进行标记, 例如 M-50%-SiC_p/Al、M-60%-SiC_p/Al 和 B-50%-SiC_p/Al、B-60%-SiC_p/Al 等。采用机械混料的方式把 SiC 颗粒与 6061Al 合金粉末充分混合均匀, 将混合均匀的粉末装入石墨模具放置于放电等离子快速烧结炉, 在真空条件下进行烧结。烧结工艺参数为: 烧结温度 520 $^{\circ}\text{C}$, 升温速度 50 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$, 烧结压力 50 MPa, 保温时间 8 min。

1.2 分析测试

使用 MS-2000 型激光粒度分析仪测量 6061Al 合金粉末和 SiC 颗粒的粒度分布。采用阿基米德排水法测试试样的相对密度。使用 ZEISS Axio Lab.A1 显微镜观察试样的显微组织, 利用 SU8020 冷场发射扫描电子显微镜观察试样的断口形貌, 用 X'Pert PRO MPD 射线衍射仪分析试样的物相组成。采用 LFA457 激光导热仪测试材料的热扩散系数, 样品尺寸为 12.7 mm $\times$ 3.0 mm, 测试温度为室温。使用 TMA402F3 型

热机械分析仪测量 CTE, 样品尺寸为 3 mm $\times$ 4 mm $\times$ 12 mm, 测量温度范围为 25~400 $^{\circ}\text{C}$, 升温速率为 5 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$, 为防止样品氧化, 整个测试过程中通入氮气保护。采用 SHIMADZU AG-X plus 型电子万能试验机测试复合材料的抗弯强度, 样品尺寸为 3 mm $\times$ 3 mm $\times$ 20 mm, 跨距为 15 mm, 加载速率为 0.5 mm/min。

2 结果与分析

2.1 复合材料的相对密度与显微组织

图 2 所示为 SiC_p/Al 复合材料相对密度随 SiC 体积分数变化曲线。可以看出, 在单粒径复合材料中, 当 SiC 颗粒体积分数在 40%~50%之间时, 其相对密度高于 99%。进一步增加 SiC 颗粒体积分数时, 相对密度迅速下降, 当 SiC 体积分数为 60%, 复合材料的相对密度仅为 96.06%。在双粒径级配复合材料中, 复合材料的相对密度随体积分数的变化趋势与单粒径复合材料的相对密度变化趋势相同。当采用双粒径 SiC 颗粒级配时, 细 SiC 颗粒填充到粗 SiC 颗粒形成的空隙中, 有效增加了混合粉末的松装密度, 再与 Al 合金粉末混合后烧结, 大大提高了复合材料的致密度, 使得 SiC 颗粒体积分数为 60%, 其相对密度达到 99.19%。

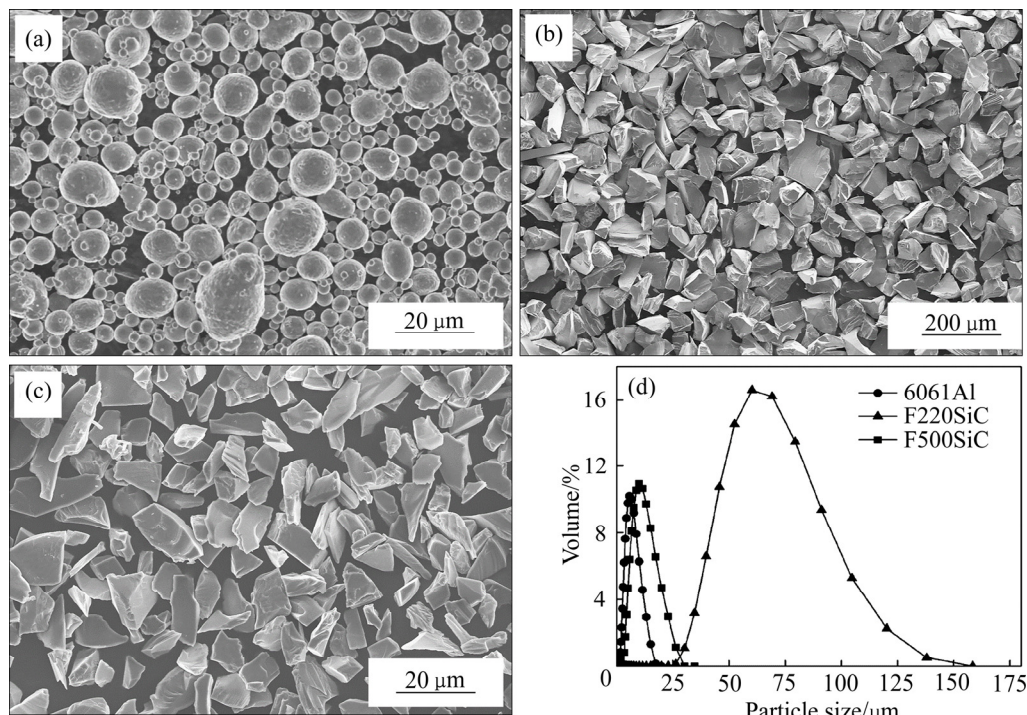


图 1 原材料颗粒的 SEM 像

Fig. 1 SEM images of raw material particles: (a) 6061 Al powders; (b) SiC-F220 powders; (c) SiC-F500 powders; (d) Particle size distributions of 6061Al, SiC-F220 and SiC-F500 powders

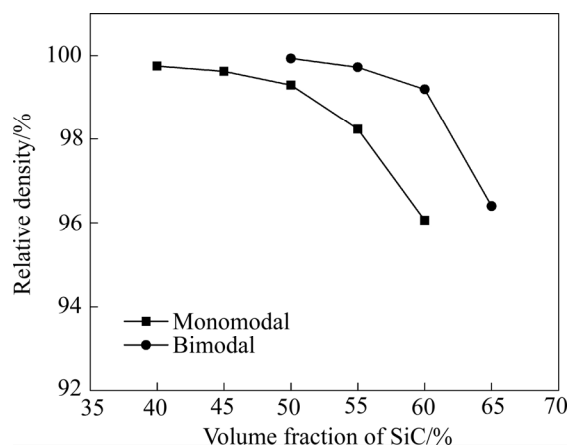


图 2 SiC_p/Al 复合材料相对密度随 SiC 体积分数变化曲线

Fig. 2 Relationships between relative density and SiC_p/Al composites with different volume fractions of SiC

图 3 所示为不同 SiC 体积分数的 SiC_p/Al 复合材料的显微照片, 图中浅灰色相为 Al 相, 深灰色相为 SiC 相。当复合材料中 SiC 体积分数为 50% 时, M-50%-SiC_p/Al 复合材料的组织致密、均匀, SiC 颗粒呈不规则多边形, 界面较为平整, 颗粒与基体结合较

好, 无明显的杂质颗粒, Al 连续地包覆在 SiC 颗粒的周围, 没有明显的孔洞等缺陷 (见图 3(a))。在 B-50%-SiC_p/Al 复合材料中, 两种 SiC 颗粒基本呈均匀随机分布且层次明显, 不存在 SiC 颗粒的偏聚区和贫化区 (见图 3(b))。在烧结之前, M-60%-SiC_p/Al 复合材料, 粗 SiC 颗粒形成较大的孔隙, 只有部分孔隙被铝合金颗粒填充; 而 B-60%-SiC_p/Al 复合材料中含有两种 SiC 颗粒, 细 SiC 颗粒和铝合金颗粒均匀地填充在粗颗粒的间隙中。因此 B-60%-SiC_p/Al 复合材料拥有较高的松装密度。在烧结过程中, M-60%-SiC_p/Al 复合材料中粗 SiC 颗粒表面不规则, 颗粒间存在着摩擦力; 在烧结压力的作用下, 并不能明显地提升其致密度, 且基体在孔隙中分布不均匀, 部分孔隙不能被熔融的基体填充 (见图 3(c))。而 B-60%-SiC_p/Al 复合材料中细 SiC 颗粒和铝合金颗粒共同填充在粗颗粒的间隙中且分布均匀; 在加压烧结时, 铝合金颗粒熔化并填充在粗/细 SiC 颗粒的间隙中, 烧结之后复合材料拥有较高的致密度 (见图 3(d))。复合材料致密无孔隙的微观组织、相互连通的 Al 基体和干净平整无有害界面反应的界面都有助于获得优异的热性能和力学性能。

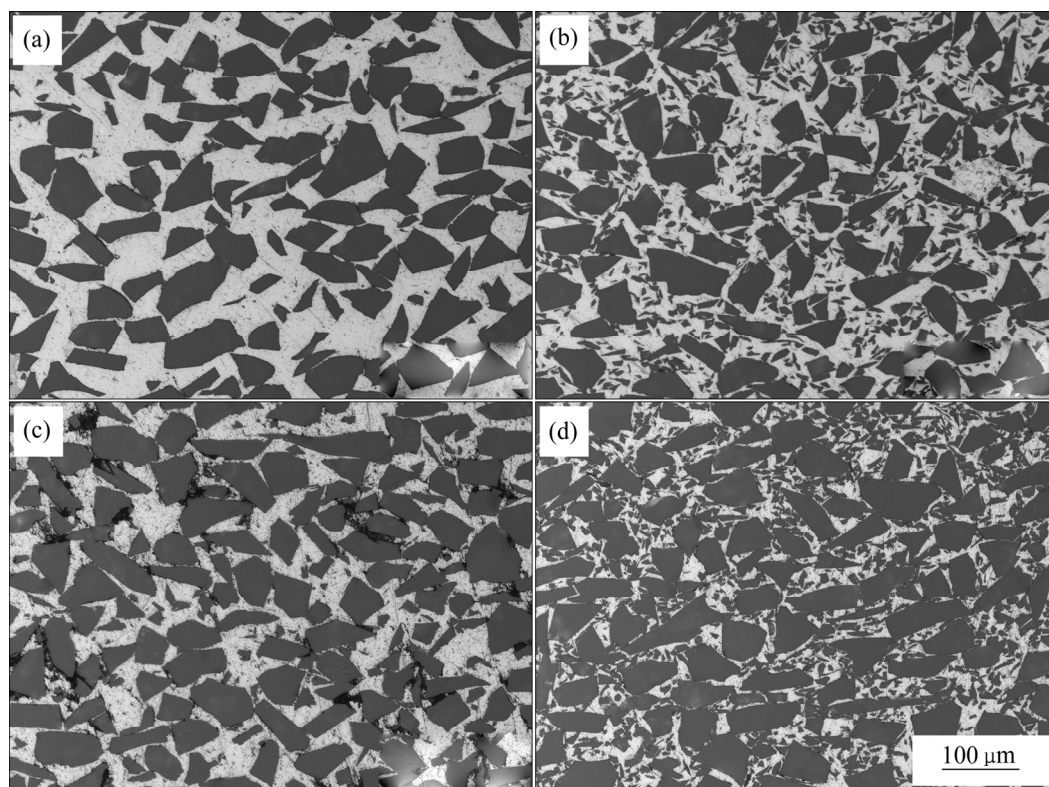


图 3 SiC_p/Al 复合材料的金相组织

Fig. 3 Metallographs of SiC_p/Al composites with different volume fractions of SiC: (a) M-50%-SiC_p/Al; (b) B-50%-SiC_p/Al; (c) M-60%-SiC_p/Al; (d) B-60%-SiC_p/Al

2.2 复合材料的物相分析

在放电等离子烧结过程中, SiC 和 Al 颗粒的烧结过程受到焦耳热、颗粒间放电和垂直单向压力的共同作用, 使蒸发-凝固、体积扩散等过程得到加强, 加速了烧结致密化过程, 因此降低了 SiC 颗粒和熔融 Al 的接触温度和接触时间, 抑制有害界面发生^[9, 14], 例如 Al_4C_3 脆性相^[11-13, 15]等。图 4 所示为不同 SiC 体积分数的 SiC_p/Al 复合材料的 XRD 谱, 复合材料中主要为 SiC 和 Al 相, 没有出现 Al_4C_3 等脆性相。另外, 没有可检测量的杂质, 例如 Al_2O_3 、 SiO_2 等, 说明本实验使用的 SPS 烧结工艺适合制备高体积分数 SiC_p/Al 复合材料。

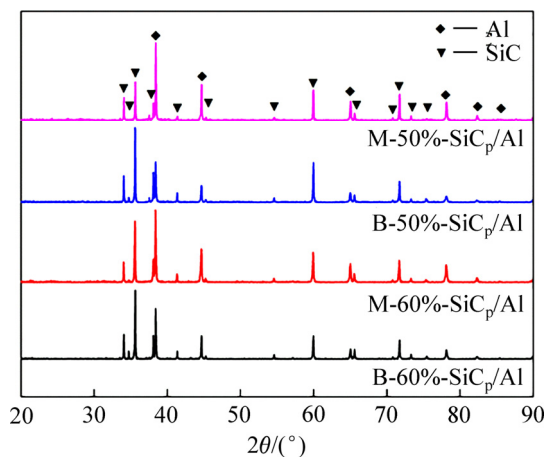


图 4 不同 SiC 体积分数 SiC_p/Al 复合材料的 XRD 谱

Fig. 4 XRD patterns of SiC_p/Al composites with different volume fractions of SiC

2.3 复合材料的热膨胀性能

电子封装材料要求与芯片具有相近的热膨胀系数, 以减少芯片与其封装外壳间的热应力, 一般要求电子封装材料的 CTE 值在 $(6\sim 10)\times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 。Turner 和 Kerner 分别提出计算复合材料的 CTE 的理论模型^[16-17]。

Turner 模型: 假设材料内部无内应力存在且材料能协调变形, 交变温度场内, 忽略空隙和微裂纹的产生, 材料内部产生所有的附加应力为张应力和压应力, 计算公式为

$$\alpha_c = \frac{\alpha_m V_m K_m + \alpha_d V_d K_d}{V_m K_m + V_d K_d} \quad (1)$$

Kerner 模型: 假设增强体为球形, 基体均匀的包覆在增强体的表面, 且考虑到复合材料的各相中存在的剪切应力和正应力的影响, 计算公式为

$$\alpha_c = \alpha_m V_m + \alpha_d V_d + V_d V_m (\alpha_d - \alpha_m) \times \frac{K_d - K_m}{V_m K_m + V_d K_d + (3K_d K_m / 4G_m)} \quad (2)$$

$$K = \frac{E}{3(1-2\nu)} \quad (3)$$

$$G = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad (4)$$

式中: α_c 、 α_d 和 α_m 分别是复合材料、增强体和基体 CTE (SiC , $4.5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$; Al , $24 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$); V_d 、 V_m 分别是增强体和基体的体积; K_d 、 K_m 分别是增强体和基体的体积模量 (SiC , $2.22 \times 10^{11} \text{ Pa}$; Al , $6.76 \times 10^{10} \text{ Pa}$); G_m 是基体的剪切模量 ($4.1 \times 10^{10} \text{ Pa}$)。

图 5(a)所示为 SiC_p/Al 复合材料的伸长量随温度的变化曲线。由图 5(a)可见, SiC_p/Al 复合材料伸长量

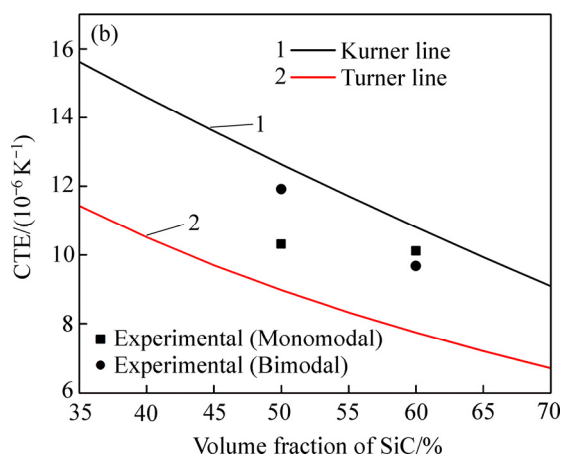
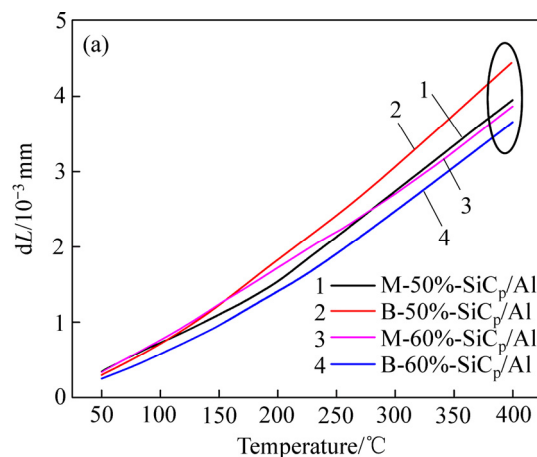


图 5 SiC_p/Al 复合材料伸长量随温度的变化曲线以及 SiC_p/Al 复合材料平均 CTE ($50\sim 400^\circ\text{C}$) 与 Kurner 和 Turner 理论计算结果比较

Fig. 5 Relationships between elongation of SiC_p/Al composites with different volume fractions of SiC and temperatures(a) and comparison of CTEs predicted theoretically using Turner and Kerner model for SiC_p/Al composites with different volume fractions of SiC(b)

随温度升高逐渐增大。主要原因如下: 1) Al 基体的 CTE 随温度升高而增大, 导致复合材料的伸长量也随温度升高而增大; 2) 当复合材料的测试温度升高后, 增强体与基体之间的界面逐渐被破坏, 增强体对铝基体膨胀的制约能力减弱, 以及复合材料中的残余应力逐渐消除, 因此 SiC_p/Al 复合材料的伸长量随温度升高而增大^[18-19]。图 5(b)所示为 SiC_p/Al 复合材料的平均 CTE(50~400 °C)实验结果与 Turner 和 Kurner 理论计算结果比较。M-50%-SiC_p/Al 复合材料在 50~400 °C 的平均 CTE 为 $10.3 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 略高于 M-60%-SiC_p/Al 复合材料的平均 CTE($10.1 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$), 其原因是 M-60%-SiC_p/Al 复合材料中含 SiC 体积分数较高, 使得复合材料的 CTE 降低; 然而 M-60%-SiC_p/Al 复合材料致密度较低、界面结合较差, 制约基体膨胀的能力较弱。因此, 在单粒径 SiC_p/Al 复合材料中增加 SiC 体积分数, 其平均 CTE 略微降低。在相同 SiC 体积分数的复合材料中, B-50%-SiC_p/Al 复合材料中 SiC 颗粒之间的间距减小, 严重阻碍位错滑移, 使复合材料中仍然保留较高密度位错, 相应的内应力较大, 从而使材料中原子能量变高, 在同等温度下原子活动能力相应更高, 其 CTE 更大^[20]。在双粒径 SiC_p/Al 复合材料中, B-50%-SiC_p/Al 和 B-60%-SiC_p/Al 复合材料的致密度均高于 99%, 可忽略孔隙对 CTE 的影响, 因此增加 SiC 体积分数较高可显著降低复合材料的 CTE^[21], 其中 B-60%-SiC_p/Al 复合材料的平均 CTE 为 $9.77 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 。

由图 5(b)可知, 实验测得平均 CTE 介于 Turner 和 Kerner 模型的预测值之间。由于 Kerner 模型中使用增强体是理想的球形而非多边不规则形, 在膨胀过程中不规则形 SiC 颗粒对 Al 基体膨胀有更强的约束作用, 导致实验值低于 Kerner 模型的预测值。SiC_p/Al 复合材料内部含有残余应力和少量孔隙, 以及基体和增强体在受热膨胀过程中不能协调变形, 导致复合材料的 CTE 高于 Turner 模型的预测值。

2.4 复合材料的热导率

SiC_p/Al 复合材料热导率的计算公式如下^[22]:

$$\lambda = \alpha \cdot \rho \cdot c_p \quad (5)$$

式中: λ 为复合材料热导率(W/(m·K)); α 、 ρ 和 c_p 分别为复合材料的热扩散系数(m²/s)、密度(g/cm³)和定压比热容(J/(kg·K))。

Euchen 假设 SiC 颗粒与铝基体之间界面结合良好, 界面热导(h_c)趋于无穷大, 在 Hasselman-Johnson 理论模型的基础上, 提出 Maxwell-Euchen 简化计算模

型^[23], 计算公式为

$$K_c = K_m \frac{2 \left(\frac{K_d}{K_m} - 1 \right) V_d + \frac{K_d}{K_m} + 2}{\left(1 - \frac{K_d}{K_m} \right) V_d + \frac{K_d}{K_m} + 2} \quad (6)$$

式中: K_c 、 K_d 和 K_m 分别表示复合材料、增强体和基体合金的热导率; V_d 为增强体的体积分数。其中 6061Al 基体合金热导率 K_m 为 180 W/(m·K), 增强体 SiC 的热导率 K_d 为 330 W/(m·K)。

图 6 所示为不同相对密度的 SiC_p/Al 复合材料热导率随 SiC 体积分数的变化及其与 Maxwell-Euchen 理论计算结果的对比。由图 6 可知, SiC_p/Al 复合材料的热导率随着 SiC 体积分数的增加先上升后迅速下降。当复合材料的相对密度高于 99%, 可忽略孔隙和界面对自由电子和声子的散射作用。因此, 当增加 SiC 的体积分数时, 复合材料的热导率增加; 当复合材料的相对密度低于 99% 时, 复合材料中孔隙和界面热阻对自由电子和声子的散射作用增加, 降低了材料的导热性能^[24]。

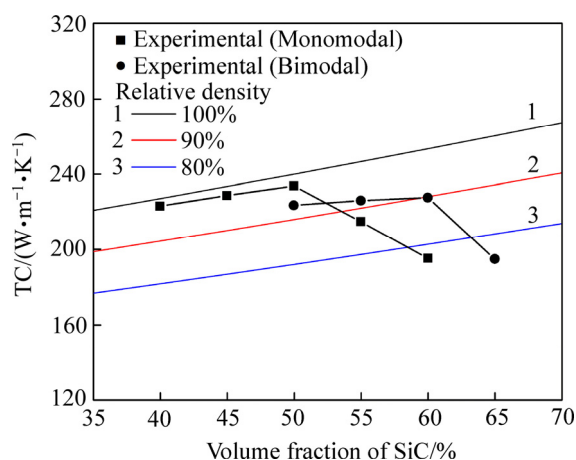


图 6 不同相对密度 SiC_p/Al 复合材料的热导率随 SiC 体积分数的变化及其 Maxwell-Euchen 理论计算结果的比较

Fig. 6 Comparison of changing curves of thermal conductivity with volume fraction of SiC for SiC_p/Al composites with different relative density by experimental and Maxwell-Euchen model

当单粒径 SiC_p/Al 复合材料中 SiC 体积分数为 40%~50% 时, 其 TC 接近 Maxwell-Euchen 预测值的 100%, 其中 M-50%-SiC_p/Al 复合材料的 TC 为 233.6 W/(m·K), 因此, 可以推断 SiC-Al 界面结合良好, 界面热阻较低。然而, B-50%-SiC_p/Al 复合材料的 TC 略低于 M-50%-SiC_p/Al 复合材料的 TC, 其相对密度均高

于 99%，主要原因是 B-50%-SiC_p/Al 复合材料中含有部分细颗粒，细颗粒的引入增大了 SiC-Al 界面面积，导致复合材料中界面热阻增加，降低了复合材料整体的 TC^[25]。因此，当双粒径 SiC_p/Al 复合材料中 SiC 的体积分数为 50%~60% 时，其 TC 略高于 Maxwell-Euchen 预测值的 TC，B-60%-SiC_p/Al 复合材料的 TC 为 227.5 W/(m·K)，高于 M-50%-SiC_p/Al 复合材料的 TC。在 M-60%-SiC_p/Al 和 B-65%-SiC_p/Al 复合材料的大量孔隙以及弱结合界面，使其 TC 低于 Maxwell-Euchen 预测值的 80%。

2.5 力学性能与断口形貌分析

图 7 所示为 SiC_p/Al 复合材料的抗弯强度随 SiC 体积分数的变化曲线。由图 7 可以看出，SiC_p/Al 复合材料的抗弯强度随 SiC 体积分数的增加逐渐降低，复合材料的抗弯强度均在 260 MPa 以上，最高可达 400 MPa。SiC_p/Al 复合材料的抗弯强度受到颗粒体积分数、大小、形状、界面结合程度、缺陷含量等因素的共同影响。因此，虽然随着 SiC 体积分数的增加，复合材料中有效承载增多，有利于提高复合材料抗弯强度；但是复合材料的致密度降低、界面结合减弱、缺陷含量增加，其弱化抗弯强度的作用强于 SiC 颗粒提高抗弯强度的作用，使得复合材料在低应力状态下断裂，抗弯强度逐渐降低。

当 SiC_p/Al 复合材料中含相同 SiC 体积分数时，双粒径 SiC_p/Al 复合材料的抗弯强度高于单粒径复合材料的抗弯强度。一方面，粗颗粒 SiC 自身缺陷较多

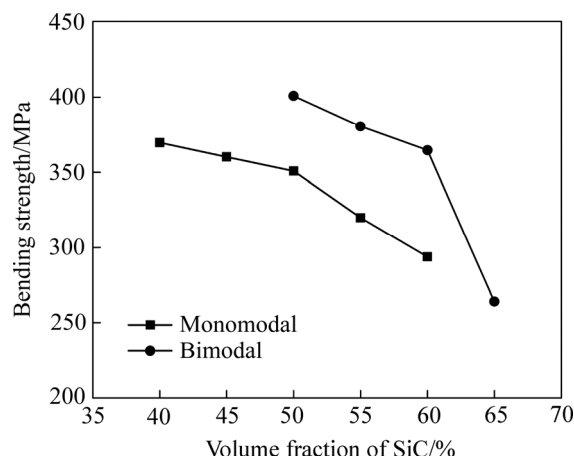


图 7 不同体积分数 SiC_p/Al 复合材料的抗弯强度

Fig. 7 Bending strengths of SiC_p/Al composites of different volume fractions of SiC

且界面面积较大，达到抗弯强度之前，复合材料中粗颗粒的增强体内部已经出现微裂纹(见图 8)，导致裂纹的扩展并减弱增强体有效承载能力，最终使复合材料在低应力状态下断裂。另一方面，在复合材料中适当添加部分细 SiC 颗粒，因其自身缺陷较少且界面面积较小而不易产生裂纹，在承受载荷时，故应力能够有效地通过界面由基体向细颗粒增强体上传递。因此，复合材料含相同体积分数的 SiC 颗粒时，采用颗粒级配增强的复合材料的抗弯强度高于单颗粒增强的复合材料的抗弯强度。

图 8 所示为 SiC_p/Al 复合材料的断口形貌。由图

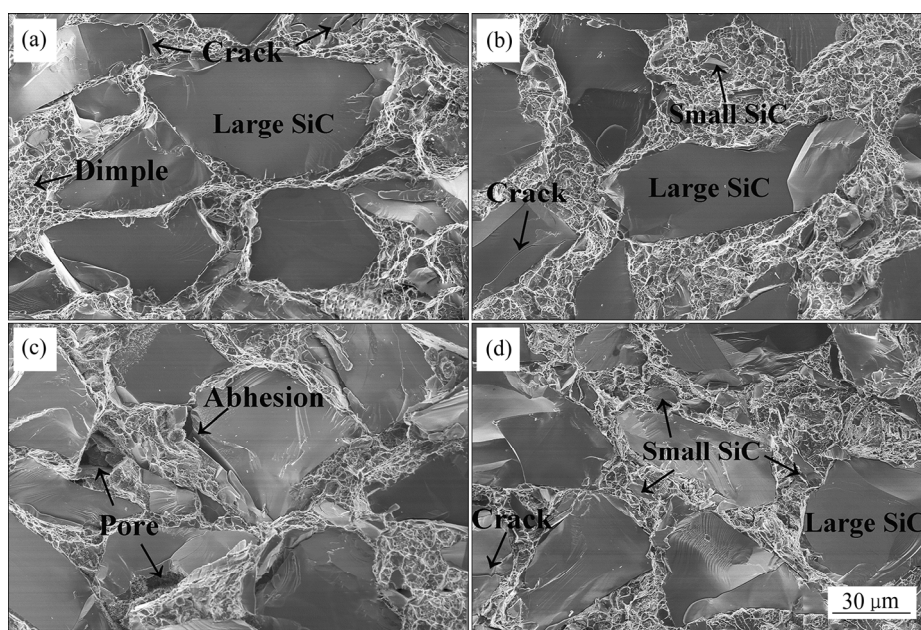


图 8 SiC_p/Al 复合材料的断口形貌

Fig. 8 SEM fractographs of SiC_p/Al composites: (a) M-50%-SiC_p/Al; (b) B-50%-SiC_p/Al; (c) M-60%-SiC_p/Al; (d) B-60%-SiC_p/Al

8(a)可以看出,复合材料中 SiC 颗粒解理断裂特征明显,可以看到 SiC 断裂表面上河流花样、断裂条纹和断裂台阶;Al 基体中出现明显的韧窝和撕裂棱,没有出现 SiC 颗粒拔出或脱粘的现象, SiC-Al 界面为强结合界面。由此可以推断得出, SiC_p/Al 复合材料的断裂类型为基体合金的韧性断裂和增强体颗粒的脆性断裂共存的混合断裂。然而在 M-60%-SiC_p/Al 复合材料的断口表面(见图 8(c)),出现未被 Al 基体填充的孔隙及 SiC 颗粒与 Al 基体的脱粘。当细 SiC 颗粒加入复合材料时(见图 8(b)和 8(d)),其分布于粗 SiC 颗粒的间隙中,断裂方式仍为解理断裂,细颗粒的加入使复合材料有效承载面积变大,因此增加了复合材料的抗弯强度。

3 结论

1) 采用放电等离子烧结技术成功制备出高体积分数 SiC_p/Al 复合材料,在单粒径 SiC_p/Al 复合材料中 SiC 颗粒均匀分布在 Al 基体中。在双粒径 SiC_p/Al 复合材料中细颗粒 SiC 填充在粗颗粒 SiC 形成的孔隙中, SiC 颗粒基本呈均匀随机分布且层次明显。

2) SiC_p/Al 复合材料中主要为 SiC 和 Al 相, SiC 颗粒与 Al 基体界面强度高,且无 Al₄C₃ 等脆性相生成。

3) M-50%-SiC_p/Al 复合材料的相对密度为 99.29%,平均热膨胀系数(50~400℃)为 $10.3 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$,热导率为 233.6 W/(m·K),抗弯强度为 350.8 MPa。B-60%-SiC_p/Al 复合材料的相对密度为 99.19%,平均热膨胀系数(50~400℃)为 $9.77 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$,热导率为 227.5 W/(m·K),抗弯强度为 364.7 MPa。表现出了良好的性能,满足电子封装材料的要求。

REFERENCES

- [1] TENG Fei, YU Kun, LUO Jie, FANG Hong-jie, SHI Chun-li, DAI Yi-long, XIONG Han-qing. Microstructures and properties of Al-50%SiC composites for electronic packaging applications[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2016, 26(10): 2647-2652.
- [2] ZHU Xiao-min, YU Jia-kang, WANG Xin-yu. Microstructure and properties of Al/Si/SiC composites for electronic packaging[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2012, 22(7): 1686-1692.
- [3] MOLINA J M, SARAVANAN R A, ARPÓN R, GARCÍA-COROVILLA C, LOUIS E, NARCISO J. Pressure infiltration of liquid aluminum into packed SiC particulate with a bimodal size distribution[J]. Acta Materialia, 2002, 50(2): 247-257.
- [4] MOLINA J M, NARCISO J, WEBER L, MORTENSEN A,

- LOUIS E. Thermal conductivity of Al-SiC composites with monomodal and bimodal particle size distribution[J]. Materials Science and Engineering A, 2008, 480(1/2): 483-488.
- [5] MONTOYA-DÁVILA M, PECH-CANUL M A, PECH-CANUL M I. Effect of bi-and trimodal size distribution on the superficial hardness of Al/SiC_p composites prepared by pressureless infiltration[J]. Powder Technology, 2007, 176(2/3): 66-71.
- [6] CHU Ke, JIA Cheng-chang, TIAN Wen-huai, LIANG Xue-bing, CHEN Hui, GUO Hong. Thermal conductivity of spark plasma sintering consolidated SiC_p/Al composites containing pores: Numerical study and experimental validation[J]. Composites A, 2010, 41(1): 161-167.
- [7] SHEN Ping, WANG Yi, REN Li-hua, LI Shi-xin, LIU Yu-hua, JIANG Qi-chuan. Influence of SiC surface polarity on the wettability and reactivity in an Al/SiC system[J]. Applied Surface Science, 2015, 355: 930-938.
- [8] TAN Zhan-qiu, LI Zhi-qiang, FAN Gen-lian, KAI Xi-zhou, JI Gang, ZHANG Lan-ting, ZHANG Di. Fabrication of diamond/aluminum composites by vacuum hot pressing: Process optimization and thermal properties[J]. Composites B, 2013, 47(47): 173-180.
- [9] MIZUUCHI K, INOUE K, AGARI Y, NAGAOKA T, SUGIOKA M, TANAKA M, TAKEUCHI T, TANI J, KAWAHARA M, MAKINO Y, ITO M. Processing of Al/SiC composites in continuous solid-liquid co-existent state by SPS and their thermal properties[J]. Composites B, 2012, 43(4): 2012-2019.
- [10] 杨俊逸, 李小强, 郭亮, 陈维平, 李元元. 放电等离子烧结 (SPS)技术与新材料研究[J]. 材料导报, 2006, 20(6): 94-97.
- YANG Jun-yi, LI Xiao-qiang, GUO Liang, CHEN Wei-ping, LI Yuan-yuan. Spark plasma sintering technology and its application in preparation of advanced materials[J]. Materials Review, 2006, 20(6): 94-97.
- [11] 尹法章, 郭宏, 贾成厂, 张习敏, 张永忠. 放电等离子烧结制备高导热 SiC_p/Al 电子封装材料[J]. 复合材料学报, 2010, 27(1): 57-61.
- YIN Fa-zhang, GUO Hong, JIA Cheng-chang, ZHANG Xi-min, ZHANG Yong-zhong. High thermal conductivity SiC_p/Al electronic packaging materials prepared by spark plasma sintering[J]. Acta Materialia Composita Sinica, 2010, 27(1): 57-61.
- [12] CHEN W, ANSELMINI-TAMBURINI U, GARAY J E, GROZA J R, MUNIR Z A. Fundamental investigations on the spark plasma sintering/synthesis process: I. Effect of dc pulsing on reactivity[J]. Materials Science & Engineering A, 2005, 394(1/2): 132-138.
- [13] HONG Chang-qing, ZHANG Xing-hong, LI Wei-jie, HAN Jie-cai, MENG Song-he. A novel functionally graded material in the ZrB₂-SiC and ZrO₂ system by spark plasma sintering[J]. Materials Science and Engineering A, 2008, 498(1/2): 437-441.
- [14] TOKITA M. Trends in advanced SPS spark plasma sintering systems and technology[J]. Journal of the Research Association of Powder Technology Japan, 1993, 30: 790-804.
- [15] FERRO A C, DERBY B. Wetting behaviour in the Al-Si/SiC

- system: interface reactions and solubility effects[J]. *Acta Metallurgica Et Materialia*, 1995, 43(8): 3061–3073.
- [16] TURNER P S. Thermal expansion stresses in reinforced plastics[J]. *J Res NBS*, 1946, 37: 239–350.
- [17] KERNER E H. The elastic and thermoplastic properties of composite media[J]. *Proceedings of the Physical Society*, 1956, B69: 808–813.
- [18] 李进军, 于家康. 电子封装用 SiC_p/Al 复合材料的热膨胀性能[J]. *热加工工艺*, 2007, 36(6): 1–3.
LI Jin-jun, YU Jia-kang. Thermal expansion properties of silicon carbide particle reinforced aluminum composite[J]. *Hot Working Technology*, 2007, 36(6): 1–3.
- [19] WANG Dong-mei, ZHENG Zhi-xiang, LÜ Jun, XU Guang-qing, ZHOU Shiang, TANG Wen-ming, WU Yu-cheng. Enhanced thermal conductive 3D-SiC/Al-Si-Mg interpenetrating composites fabricated by pressureless infiltration[J]. *Ceramics International*, 2017, 43(2): 1755–1761.
- [20] 杨梅君. SiC_p/Al 电子封装复合材料的SPS烧结及性能研究[D]. 武汉: 武汉理工大学, 2006: 1–68.
YANG Mei-jun. Fabrication and properties of SiC_p/Al electrical packaging composites by spark plasma sintering[D]. Wuhan: Wuhan University of Technology, 2006: 1–68.
- [21] 王涛. 高体积分数 SiC/Al 电子封装材料的制备及性能研究[J]. *硅酸盐通报*, 2013, 32(3): 000457–460.
Wang Tao. Fabrication and properties study of high fractional SiC/Al electronic packaging composite[J]. *Bulletin of The Chinese Ceramic Society*, 2013, 32(3): 000457–460.
- [22] KIM Y M, CHOI S W, HONG S K. The behavior of thermal diffusivity change according to the heat treatment in Al-Si binary system[J]. *Journal of Alloys & Compounds*, 2016, 687: 54–58.
- [23] EUCKEN A. Heat transfer in ceramic refractory materials: Calculation from thermal conductivities of constituents[J]. *Fortsch Gebiete Ingenieurw*, B3, Forschungsheft, 1932, 16: 353–360.
- [24] KUMARI L, ZHANG T, DU G H, LI W Z, WANG Q W, DATYE A, WU K H. Thermal properties of CNT-Alumina nanocomposites[J]. *Composites Science & Technology*, 2008, 68(9): 2178–2183.
- [25] TAN Zhan-qi, CHEN Zhi-zhong, FAN Gen-lian, JI Gang, ZHANG Jie, XU Run, SHAN Ai-dang, LI Zhi-qiang, ZHANG Di. Effect of particle size on the thermal and mechanical properties of aluminum composites reinforced with SiC and diamond[J]. *Materials and Design*, 2016, 90: 845–851.

Effect of SiC grain gradation on microstructure and performance of SiC_p/Al composite

WANG Wu-jie¹, HONG Yu², LIU Jia-qin^{1,3,4}, WU Yu-cheng^{1,2,3,4}

(1. Institute of Industry & Equipment Technology, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China;

2. School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China;

3. National-Local Joint Engineering Research Centre of Nonferrous Metals and Processing Technology, Hefei 230009, China;

4. Laboratory of Nonferrous Metal Material and Processing Engineering of Anhui Province, Hefei 230009, China)

Abstract: SiC_p/Al composite with high volume fraction of SiC was fabricated by spark plasma sintering. The effects of SiC grain gradation on the microstructure, thermal performance and mechanical properties of composite were investigated. The results show that the SiC_p/Al composites are composed of SiC and Al, no reaction product such as Al₄C₃ fragility phase produces at the interface, and the SiC particles with two sizes distribute uniformly and randomly. The relative density of the composites containing bimodal SiC particles decreases from 99.93% to 96.4% with increasing the volume fraction of SiC from 50% to 65%. Relative density, thermal conductivity, average thermal expansion coefficient (50–400 °C), and the bending strength of the composite containing 60% bimodal SiC particles are 99.19%, 227.5 W/(m·K), $9.77 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ and 364.7 MPa, respectively.

Key words: SiC_p/Al composites; spark plasma sintering; grain gradation; thermal conductivity; thermal expansion coefficient; bending strength

Foundation item: Project(2014DFA50860) supported by the National Science and Technology Cooperation of China

Received date: 2018-01-05; **Accepted date:** 2018-05-30

Corresponding author: WU Yu-cheng; Tel: +86-13605513206; E-mail: ycwu@hfut.edu.cn

(编辑 龙怀中)