

SiCp 粒径级配对 55%SiCp/6061Al 复合材料组织和性能的影响

王梦奇^{1,2}, 刘越¹, 肖春林³, 刘春明^{1,2}

(1. 东北大学材料科学与工程学院, 辽宁沈阳 110819; 2. 东北大学材料各向异性与织构教育部重点实验室, 辽宁沈阳 110819; 3. 辽宁蓝煜新材料有限公司, 辽宁铁岭 112606)

摘要: 采用真空热压法制备了 55%SiCp/6061Al (55% 为体积分数) 复合材料, 研究 SiCp 粒径级配对复合材料 SiCp 分布均匀度、致密度和抗弯强度的影响。研究表明: 粒径级配复合材料组织致密、SiCp 分布均匀且 SiCp 与 6061Al 合金基体界面结合强度高。双粒径 (60+25) μm 、质量比 4:1 复合材料热处理后抗弯强度由 395 MPa 提高为 548 MPa; 三粒径级配为 (120+60+25) μm 、质量比为 1:1:1 的复合材料热处理前抗弯强度最高, 为 397 MPa; 双粒径级配 (106+25) μm 、质量比 4:1 的复合材料致密度 >99.00%、均匀度 >90.00%、热处理后抗弯强度 >400 MPa, 具有优异的综合性能。

关键词: 55%SiCp/6061Al 复合材料; 真空热压; 粒径级配; 均匀度; 致密度; 抗弯强度

中图分类号: TB 333 文献标志码: A 文章编号: 1005-3026(2024)06-0802-06

Effect of SiCp Particle Size Grading on the Microstructure and Properties of 55%SiCp/6061Al Composites

WANG Meng-qi^{1,2}, LIU Yue¹, XIAO Chun-lin³, LIU Chun-ming^{1,2}

(1. School of Materials Science & Engineering, Northeastern University, Shenyang 110819, China; 2. Key Laboratory of Material Anisotropy and Texture, Ministry of Education, Northeastern University, Shenyang 110819, China; 3. Liaoning Lanyu New Material Co., Ltd., Tieling 112606, China. Corresponding author: LIU Yue, E-mail: db-dx555@163.com)

Abstract: 55%SiCp/6061Al (55% is volume fraction) composites were prepared using the vacuum hot pressing method. The effects of SiCp particle size on distribution uniformity, density and bending strength of the composites were investigated. The results showed that composites with particle size grading have a dense microstructure, uniform SiCp distribution and high interfacial bonding strength between SiCp and the 6061Al alloy matrix. The bending strength of (60+25) μm composite with a mass ratio of 4:1 raises from 395 MPa to 548 MPa. The bending strength of (120+60+25) μm composite with a mass ratio of 1:1:1 is the highest, reaching 397 MPa. The double grain size grading (106+25) μm composite with a mass ratio 4:1 exhibits excellent comprehensive properties, with density >99.00%, uniformity >90.00% and bending strength >400 MPa after heat treatment.

Key words: 55%SiCp/6061Al composite; vacuum hot pressing; grain size grading; uniformity; density; bending strength

在国家第十四个五年计划的推动下, 5G 基站和新基建以及新能源汽车迅猛发展, 对电子器件功率及轻量化提出更高要求, 传统的电子封装材料已经不能满足大功率电子元器件散热及热

稳定性的要求。高体积分数 SiCp 增强铝基复合材料具有密度低、热导率高、热膨胀系数低^[1-4]等特点, 可以替代传统电子封装材料, 在电子封装材料行业具有广阔前景, 一直是国内外学者研究

的热点课题^[4-8]。

王海陆等^[9]通过改变纯铁粉颗粒粒径分布建立多组冷压模型,在大、中、小粒径颗粒粒径为(150+106+45) μm 、质量比为60:15:25的粒径配比下,孔隙率为18.08%,最终相对密度最高,压缩性最好。欧阳鸿武等^[10]采用各组元粒度比大于7的球形粉末或近球形粉末,装料过程中采用适当的振动同时提高颗粒混合均匀性,提高多元粉末堆积密度。侯永改等^[11]假设颗粒以立方紧密堆积形式存在,小颗粒与中颗粒相切的级配堆积时, $D_{\text{粗}}:D_{\text{中}}:D_{\text{细}}=4:3:1$,质量比17:7:1,孔隙率为24.13%。贺小祥等^[12]采用粉末触变成形法研究3种SiCp 粒度组合对50%SiCp/Al-10%Si(50%为体积分数,10%为质量分数)复合材料组织性能的影响,分别是单粒径100 μm 、双粒径(100+14) μm (质量比3:1)和三粒径(100+14+5) μm (质量比7:2:1),复合材料孔隙率从4.76%降低至2.98%,抗弯强度从270 MPa提高到382 MPa。Chen等^[13]采用挤压铸造制备SiCp/A356复合材料,50 MPa压

力下, SiCp 粒径比为125:38:19:7.5(体积比10:5:3:2)制备出密度为3.043 g/cm^3 、致密度>99%、抗弯强度为478 MPa的70%SiCp/A356(70%为体积分数)复合材料。

虽然目前对高体积分数SiCp/Al复合材料的研究较多,但关于粒径级配对复合材料组织及性能的影响还没有深入研究。因此,本文采用真空热压法制备55%SiCp/6061Al复合材料,研究粒径级配对复合材料微观组织和力学性能的影响,制备出致密度 $\geq 99.0\%$ 、抗弯强度 ≥ 350 MPa的复合材料。

1 实验过程

1.1 原材料选择与复合材料制备

基体选用6061Al合金,主要化学成分(质量分数)如表1所示;采用平均粒径120,100,60,50,40,25 μm 的SiCp作为增强相,真空热压烧结工艺:620 $^{\circ}\text{C}$ 保温2h,热压压力40 MPa。将4种不同复合材料分别编号1~4,如表2所示。

表1 6061Al主要化学成分(质量分数)

Table 1 The main chemical composition of 6061Al(mass fraction)

Mg	Si	Cu	Cr	Fe	Mn	Zn	Ti	Al
0.8~1.2	0.4~0.8	0.15~0.4	0.04~0.35	≤ 0.7	≤ 0.15	≤ 0.25	≤ 0.15	余量

表2 55%SiCp/6061Al复合材料SiCp粒径比及质量比
Table 2 SiCp particle size ratio and mass ratio of 55% SiCp / 6061Al composites

试样序号	粒径级配/ μm	粒径比	质量比
1(双粒径)	(60+25)	2.4:1	4:1
2(双粒径)	(100+25)	4:1	4:1
3(三粒径)	(120+60+25)	4.8:2.4:1	1:1:1
4(三粒径)	(100+60+40)	2.5:1.5:1	3:2:1

1.2 SiCp 粒径级配选择

研究表明^[14-15],双粒径颗粒混合物的堆积密度随粗粒组或细粒组含量的增大而先增大后减小,随粒径比的增大而减小,如图1a所示;图1b为三粒径组分碳化硅体系的组成与堆积密度的关系;当小颗粒球体与中颗粒球体相切时^[11],小颗粒不会将中颗粒球体和大颗粒球体挤开,此时粒径比 $D_{\text{粗}}:D_{\text{中}}:D_{\text{细}}=4:3:1$,堆积密度达到75.87%。Omatete等^[17]充分考虑了粒径比、混合比例以及不同的起始堆积密度的影响,通过对Furnas模型进行修正得到一个经验公式,用于计算双粒径颗粒混合时的堆积密度:

$$\rho E_{\text{mix}} = \rho E_{\text{c}} + (1 - \rho E_{\text{c}}) \rho E_{\text{f}} |e X_{\text{f}} \ln X_{\text{f}}|^{\frac{5}{4\rho E_{\text{c}}}} \exp\left(-\frac{4}{r}\right). \quad (1)$$

式中: ρE_{mix} 为双粒径混合时的堆积密度; ρE_{c} 为粗颗粒堆积密度; ρE_{f} 为细颗粒堆积密度; X_{f} 为细颗粒离散分布程度; r 为粗细颗粒粒径比,研究发现 $r < 5$ 时,实验值与经验公式计算值接近。

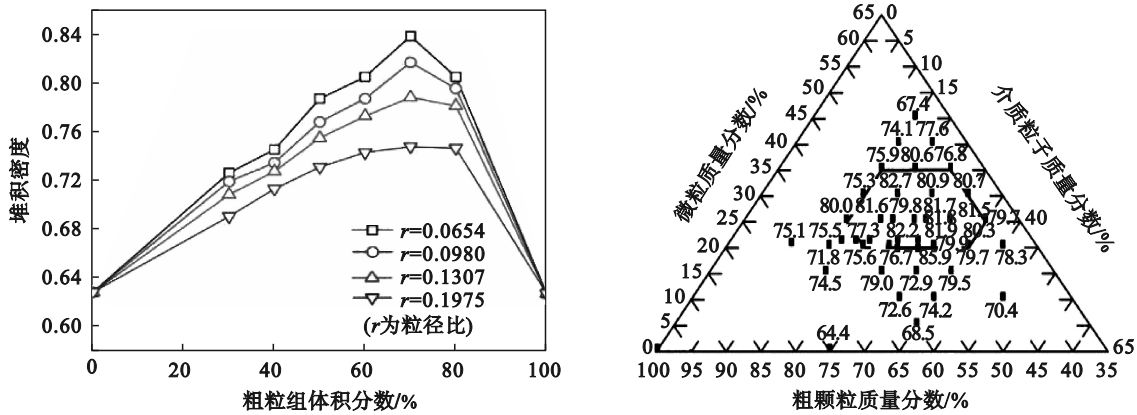
综合上述研究,本文研究的双粒径和三粒径级配复合材料的粗细颗粒之比均小于5,且三粒径级配是在双粒径级配基础上添加更细的颗粒,相邻组分SiCp比值也满足小于5的条件。

1.3 组织观察及性能测定

采用德国蔡司倒立式金相显微镜观察样品金相组织。为了定量评价SiCp颗粒空间分布均匀性,采用面积分数变化率法^[18],统计 n 个随机视域颗粒面积分数 $A_i (i=1, \dots, n)$,由 A_i 求出 n 个随机视域面积分数的标准偏差:

$$\sigma_{A_i} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum (A_i - \bar{A})^2}. \quad (2)$$

式中, \bar{A} 为各视域面积分数的平均值,再对标准偏差作无量纲化处理:

图1 SiCp粒径组成与堆积密度的关系^[14-16]Fig. 1 Relationship between bulk density and particle size composition of SiCp^[14-16]

(a)—双粒径; (b)—三粒径.

$$\frac{\sigma_{A_i}}{A} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum \left(\frac{A_i}{A} - 1 \right)^2}, \quad (3)$$

$$v = 1 - \frac{\sigma_{A_i}}{A} = 1 - \sqrt{\frac{1}{n} \sum \left(\frac{A_i}{A} - 1 \right)^2}. \quad (4)$$

式(1)~式(3)作为颗粒均匀性的定量描述,均匀度 v 越大表明SiCp在基体中分布越均匀.

密度测试采用排水法测量,计算公式为

$$\rho = m_1 \cdot \frac{\rho_0}{m_1 - m_2}. \quad (5)$$

式中: ρ 为体积密度; ρ_0 为实验中使用的液体密度,本研究使用水; m_1 为干燥试样的质量; m_2 为在液体中试样的浮重度.

采用液压式万能试验机测试复合材料的抗弯强度.利用线切割把复合材料切成尺寸规格为5 mm×5 mm×50 mm的三点弯曲试样,跨距为25 mm,加载速率0.5 mm/min,每种复合材料取3个样品.

2 结果与分析

2.1 SiCp粒径级配55%SiCp/6061Al复合材料致密度

采用同样体积分数单粒径SiCp时,复合材料致密度随SiCp粒径的减小而减小^[19];不同粒径级配复合材料致密度如图2所示;双粒径(100+25) μm 、质量比4:1的复合材料致密度最高,为99.66%;双粒径(60+25) μm 、质量比4:1的复合材料致密度最低,为98.94%;粒径级配复合材料孔隙率均低于1.5%,满足55%SiCp/6061Al复合材料对孔隙率的要求.实现颗粒增强金属基复合材料的热压烧结致密化主要依靠以下3点:①不可压缩增强体颗粒的分散均匀性;②可压缩相金属粉末的烧结致密化;③金属基体与增强体之间有良好的

界面润湿性.

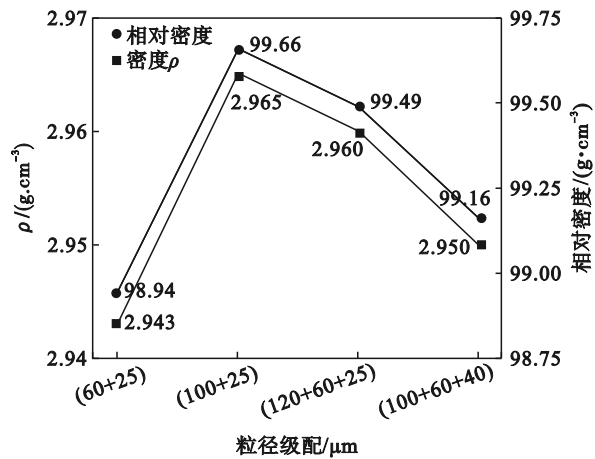


图2 55%SiCp/6061Al复合材料致密度

Fig. 2 Density of 55%SiCp/6061Al composites

2.2 SiCp粒径级配55%SiCp/6061Al复合材料显微组织

双粒径复合材料试样1和2没有明显的孔洞,试样3 SiCp在基体中分布比试样4 SiCp分布均匀.平均粒径60 μm 的SiCp粒度分布较窄,60 μm 粒径SiCp形貌以不规则四边形为主,还有少许椭球状,如图3a所示,25 μm 粒径SiCp含量不足以填补60 μm SiCp间隙,出现局部“贫SiCp区”,导致复合材料致密度降低.100 μm SiCp形貌长条状为主,还有少许尖角或三角状,如图3b所示.三粒径复合材料试样3和4没有明显的孔洞,如图3c和图3d所示.SiCp分布的均匀性明显受到增强体SiCp和基体粉末颗粒尺寸比的影响,比值越大, SiCp分布越均匀; SiCp粒径增大后,必然导致力学性能降低;采用合理粒径级配,即采用增强体和基体较小粒径比可以获得大粒径比带来的高均匀性,同时获得较高的力学性能.

利用 Image-ProPlus6.0 统计试样 1~4 的 36 个随机视域 SiCp 面积分数,并根据式(1)~式(3)计算颗粒分布的均匀度,如图 4 所示;双粒径(100+25) μm 级配时, SiCp 在 6061Al 基体中分布均匀度为 90.45%。增强体颗粒分散均匀性的致密化机理主要有:①均匀分散的增强体颗粒保证了

颗粒之间金属基体的均匀性,从而有利于金属基体的热压烧结致密化;②均匀分散的增强体颗粒,避免在热压烧结过程中因颗粒接触而形成得不到基体补充的封闭孔隙。不均匀分布的颗粒造成了复合材料微观组织的不均匀性,进而造成复合材料力学性能的降低。

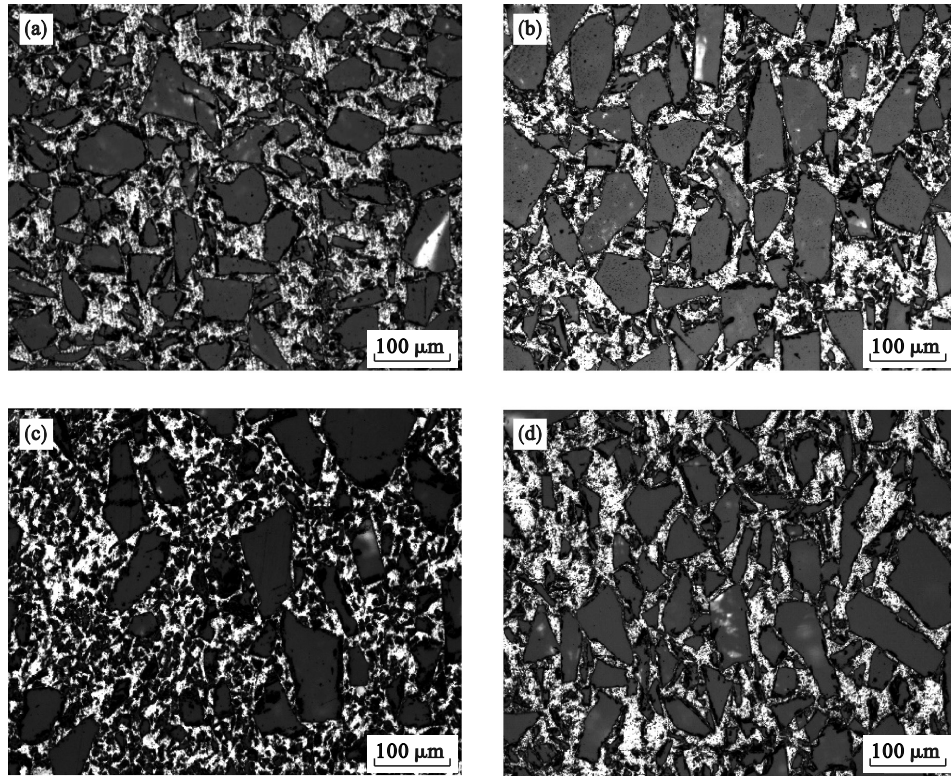


图 3 粒径级配 SiCp/6061Al 复合材料微观组织

Fig. 3 Microstructure of SiCp/6061Al composites with particle size grading

(a)—(60+25) μm ; (b)—(100+25) μm ; (c)—(120+60+25) μm ; (d)—(100+60+40) μm .

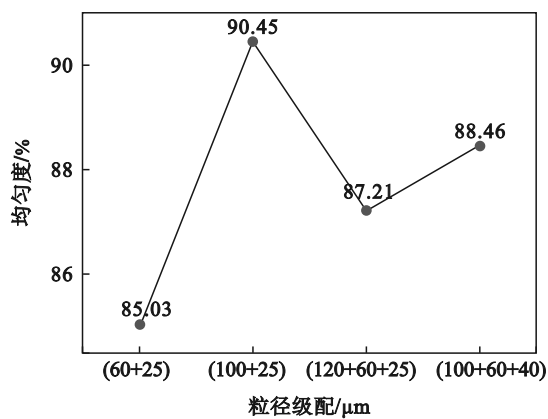


图 4 SiCp 在 6061Al 基体中分布均匀度

Fig. 4 Distribution uniformity of SiCp in 6061Al matrix

2.3 SiCp 粒径级配 55%SiCp/6061Al 复合材料力学性能

研究^[20-21]表明,无论是单粒径的 SiCp 还是 SiCp 粒径级配, SiCp/Al 复合材料抗弯强度随

SiCp 体积分数(>45%)的增大而减小,而 SiCp 体积分数相同时, SiCp 粒径级配复合材料的抗弯强度大于单粒径复合材料的抗弯强度。图 5 为不同粒径级配 55%SiCp/Al 复合材料抗弯强度;热处理前三粒径(120+60+25) μm 、质量比 1:1:1 复合材料的抗弯强度最大,为 397 MPa,比双粒径(100+25) μm 、质量比 4:1 复合材料的抗弯强度提高 15%;热处理后双粒径(60+25) μm 复合材料抗弯强度最大,为 548 MPa。4 种不同粒径 SiCp 组合,采用合理的粒径比和质量比就可以得到比较优异的弯曲性能。

2.4 SiCp 粒径级配 55%SiCp/6061Al 复合材料断口形貌

双粒径(60+25) μm 和(100+25) μm 复合材料断口有大量韧窝和撕裂棱,6061Al 基体中有一定数量的孔洞, SiCp 有多处发生开裂,是典型的解理断口形貌, SiCp 与基体脱粘,如图 6a、图 6b

所示;试样 3 断口韧窝和撕裂棱明显减少,细 SiCp 分布在粗 SiCp 间隙,粗 SiCp 与基体结合紧密,保证了有效承载面积,如图 6c 所示. SiCp 从双粒径增加到三粒径,复合材料断口韧窝不断减少,三粒径(120+60+25), (100+60+40) μm 复合材料 SiCp 断裂面最平整, SiCp 与基体界面结合强度足够高,断裂的 SiCp 仍旧稳固镶嵌在铝基体中,粗、细 SiCp 断裂面呈现穿晶解理的脆性断裂特征,其他复合材料 SiCp 局部有拔出、破碎或基体中出现孔洞的现象,如图 6a、图 6b 所示.

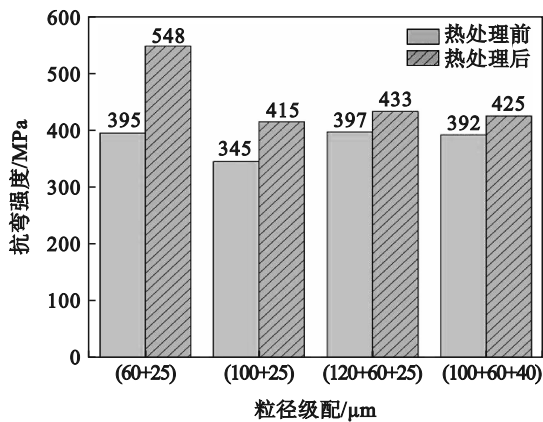


图 5 55%SiCp/6061Al 复合材料抗弯强度

Fig. 5 Bending strength of 55%SiCp/6061Al composites

双粒径(60+25)和(100+25) μm 复合材料沿着基体和增强体边界开裂,增强体不能发挥其作为复合材料增强颗粒的作用,引起材料性能的恶化.分析其原因,主要是由于 SiCp 粒径大小影响复合材料内部应力的分布状态,颗粒尺寸越大,应力集中越严重,粗颗粒优先开裂;另一方面,颗粒尺寸增大,颗粒的比表面积减小,颗粒表面及内部缺陷也越多,由于大粒径 SiCp 的层错能很低,在载荷的作用下,层错易成为裂纹源或者裂纹扩展的路径,这些缺陷为成为材料断裂的裂纹源,造成粗颗粒的优先脆断,从而导致 SiCp 与基体脱粘现象发生.本实验中 SiCp 的制备方法是大大块 SiCp 经机械破碎获得的,而 SiCp 粒径的增加,也会伴随 SiCp 内部缺陷的增加,导致试样在正常断裂强度之前发生断裂. SiCp 粒径越大,粒度分布越宽,粒径超过一定范围,细颗粒的比例提高,这些细颗粒很难均匀分散开,且粗颗粒粒径过大不利于热压烧结致密化.三粒径体系中引入大量 25 和 40 μm 的 SiCp,当 SiCp 位于晶界时,晶粒间的协调便受到抑制,需要更大的外力才能促使晶粒变形. SiCp 此时的增强效果与 SiCp 的平均间距的平方根成反比.

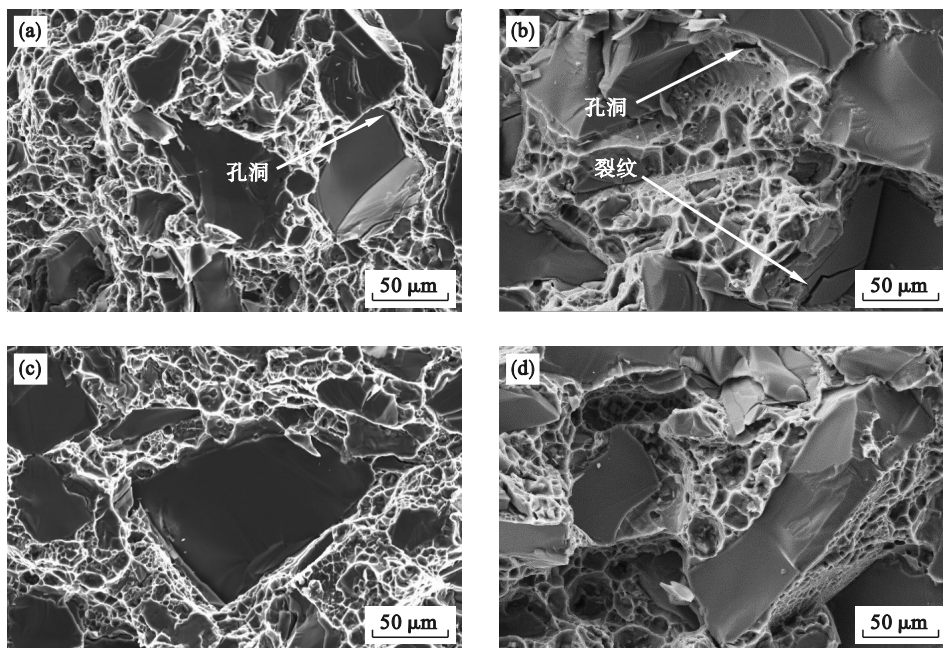


图 6 粒径级配 55%SiCp/6061Al 复合材料断口形貌

Fig. 6 Fracture morphology of 55%SiCp/6061Al composites with particle size grading (a)—(60+25) μm ; (b)—(100+25) μm ; (c)—(120+60+25) μm ; (d)—(100+60+40) μm .

3 结 论

1) SiCp 粒径级配 55%SiCp/6061Al 复合材

料,组织致密、SiCp 在基体中分散均匀且与基体界面结合强度高.

2) 双粒径(60+25) μm 复合材料热处理后抗

弯强度提高由 395 MPa 提高为 548 MPa; 双粒径级配(100+25) μm 复合材料均匀度和致密度为 90.45% 和 99.66%, 热处理后抗弯强度提高 20.3%, 具有优异的综合性能。

3) 三粒径级配时, 粒径级配为(120+60+25) μm 、质量比 1:1:1 复合材料热处理前抗弯强度为 397 MPa, 比双粒径(100+25) μm 复合材料抗弯强度提高 15%。

参考文献:

- [1] 聂俊辉, 樊建中, 魏少华, 等. 航空用粉末冶金颗粒增强铝基复合材料研制及应用[J]. 航空制造技术, 2017, 60(16): 26-36.
(Nie Jun-hui, Fan Jian-zhong, Wei Shao-hua, et al. Research and application of powder metallurgy particle reinforced aluminum matrix composite used in aviation [J]. *Aeronautical Manufacturing Technology*, 2017, 60(16): 26-36.)
- [2] Teng F, Yu K, Luo J, et al. 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.
- [3] Kim D Y, Cha P R, Nam H S, et al. Effect of material and process variables on characteristics of nitridation-induced self-formed aluminum matrix composites-part 2: effect of nitrogen flow rates and processing temperatures [J]. *Materials*, 2020, 13(5): 1213-1222.
- [4] Yan Y W, Geng L. Effects of particle size on the thermal expansion behavior of SiCp/Al composites [J]. *Journal of Materials Science*, 2007, 42(15): 6433-6438.
- [5] Wang S, Liu G, Yan J, et al. Study of Al/SiC package substrate for high power LED [C]//8th China International Conference on High-Performance Ceramics. 2014: 285-289.
- [6] Sahin Y, Acilar M. Production and properties of SiCp-reinforced aluminium alloy composites [J]. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2003, 34(8): 709-718.
- [7] Ye T K, Xu Y X, Ren J. Effects of SiC particle size on mechanical properties of SiC particle reinforced aluminum metal matrix composite [J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2019, 753: 146-155.
- [8] 朱万波, 张正贵, 王全兆, 等. 体积分数为 65%SiCp/A356 复合材料的微观结构和界面反应研究[J]. 有色金属工程, 2021, 11(2): 31-37.
(Zhu Wan-bo, Zhang Zheng-gui, Wang Quan-zhao, et al. Study on the microstructure and interface reaction of SiCp/A356 composite with a volume fraction of 65% [J]. *Nonferrous Metals Engineering*, 2021, 11(2): 31-37.)
- [9] 王海陆, 刘军, 林立, 等. 基于离散元的不同粒径配比粉末压制相对密度与力链分析[J]. 粉末冶金技术, 2021, 39(6): 490-498.
(Wang Hai-lu, Liu Jun, Lin Li, et al. Compacting relative density and force chain analysis of powders with different particle size ratios based on discrete element [J]. *Powder Metallurgy Technology*, 2021, 39(6): 490-498.)
- [10] 欧阳鸿武, 刘咏, 王海兵, 等. 球形粉末堆积密度的计算方法[J]. 粉末冶金材料科学与工程, 2002, 7(2): 87-92.
(Ouyang Hong-wu, Liu Yong, Wang Hai-bing, et al. Calculation method for random packing of sphere particles [J]. *Materials Science and Engineering of Powder Metallurgy*, 2002, 7(2): 87-92.)
- [11] 侯永改, 李文凤, 郭会师, 等. SiC 耐磨材料颗粒级配的设计与研究[J]. 中国陶瓷, 2010, 46(12): 54-57.
(Hou Yong-gai, Li Wen-feng, Guo Hui-shi, et al. Design and research on the particle size distribution of wear-resistant material sic [J]. *China Ceramics*, 2010, 46(12): 54-57.)
- [12] 贺小祥, 阎峰云, 刘振华, 等. 粒度组合对 SiC_p/Al 复合材料组织与性能的影响[J]. 特种铸造及有色合金, 2015, 35(7): 742-745.
(He Xiao-xiang, Yan Feng-yun, Liu Zhen-hua, et al. Effects of SiC particles with varied granularity combination on microstructure and properties of high volume SiC_p/Al composites [J]. *Special Casting & Nonferrous Alloys*, 2015, 35(7): 742-745.)
- [13] Chen C Y, Chao C G. Effect of particle-size distribution on the properties of high-volume-fraction SiCp-Al-based composites [J]. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 2000, 31(9): 2351-2359.
- [14] An X Z, Chai H Y. Packing densification of binary cylindrical particle mixtures under 3D mechanical vibrations [J]. *Advanced Powder Technology*, 2016, 27(6): 2489-2495.
- [15] An X Z, Li C, Qian Q. Experimental study on the 3D vibrated packing densification of binary sphere mixtures [J]. *Particuology*, 2016, 27: 110-114.
- [16] Lee J H, Lackey W J, Benzel J F. Ternary packing of SiC and diamond particles in ethanol [J]. *Journal of Materials Research*, 1996, 11(11): 2804-2810.
- [17] Omatete O, Janney M A, Strehlow R A. Gel casting—a new ceramic forming process [J]. *American Ceramic Society Bulletin*, 1991, 70(10): 1641-1650.
- [18] 谢国宏, 厉松春, 王务献, 等. 颗粒增强金属基复合材料中颗粒分布均匀性的定量金相分析方法[J]. 理化检验(物理分册), 1995, 31(1): 36-38.
(Xie Guo-hong, Li Song-chun, Wang Wu-xian, et al. Quantitative metallographic analysis method of particle distribution uniformity in particle reinforced metal matrix composites [J]. *Physical Testing and Chemical Analysis Part A: Physical Testing*, 1995, 31(1): 36-38.)
- [19] Rahimian M, Ehsani N, Parvin N, et al. The effect of particle size, sintering temperature and sintering time on the properties of Al-Al₂O₃ composites, made by powder metallurgy [J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2009, 209(14): 5387-5393.
- [20] Zhu X M, Yu J K, Wang X Y. Microstructure and properties of Al/Si/SiC composites for electronic packaging [J]. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 2012, 22(7): 1686-1692.
- [21] Zhang Q G, Gu M Y. Effect of silicon carbide particles on properties of Al/Sip+SiCp [J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2006, 419(1/2): 86-90.