

# 高体积分数颗粒预制件及其复合材料的制备

熊德赣 赵 恂 姜冀湘 郝元恺 易 伟

( 国防科技大学航天与材料工程学院 长沙 410073 )

**摘 要** 研究了高体积分数颗粒预制件制备工艺及其对复合材料复合质量的影响。用超声分散工艺获得了不同粒径颗粒分布均匀的预制件。用单一粒径及多种粒径制成的预制件的最大体积分数分别为 53 % 和 66 %。采用改进的压力浸渗工艺制备了宏观、微观质量均较好的  $\text{SiC}_p/\text{Al}$  复合材料。

**关键词** 预制件,制备工艺,压力浸渗,金属基复合材料

## Fabrication of High Volume Fraction Particle-Preforms and Their Composites

Xiong Degan Zhao Xun Jiang Jixiang Hao Yuankai Yi Wei

( College of Aerospace and Materials Engineering , National University of Defense Technology Changsha 410073 )

**Abstract** The technology of fabricating high volume fraction particle-preform and it's effect on the quality of their composites is investigated. Preforms with homogeneous distribution of large and small particles are made by ultrasonic dispersing technology. The maximum volume fractions are 53 % and 66 % respectively for single-sized and multi-sized particle preforms. Sound  $\text{SiC}_p/\text{Al}$  composites with good macrostructure and microstructure can be obtained by improving press infiltration technology.

**Key words** Preform, Technology, Press infiltration, Metal-matrix composites

### 1 引言

颗粒/金属基复合材料的热物理性能具有较好的可设计性,因而它在电子封装领域中的应用受到了广泛的关注<sup>[1~4]</sup>。为使 MMCs 能够满足电子封装的技术要求,通常要求采用较高体积分数的颗粒,因此制备高体积分数的预制件是关键的一环。S. W. Lai 等<sup>[3]</sup>用真空反压法、M. K. Premkumar 等<sup>[4]</sup>用真空辅助压力浸渗制备了颗粒体积分数为 55 % ~ 75 % 的颗粒/铝基复合材料。真空反压法和真空辅助压力浸渗法需要形成一定的真空度,设备较复杂,工艺成本较高。

本文采用压力浸渗工艺制备复合材料,研究了粘接剂添加量、成型压强、超声处理工艺等因素对高体积分数颗粒预制件及其复合材料的影响。

### 2 试验

颗粒选用郑州飞鸽砂轮厂生产,名义尺寸分别为 3  $\mu\text{m}$ 、28  $\mu\text{m}$  和 63  $\mu\text{m}$  的  $\text{SiC}$  颗粒,基体铝合金为 6013,粘接剂为磷酸盐<sup>[1]</sup>。

将碳化硅颗粒、丙酮和粘接剂按一定比例混合,经超声处理分散后倒入模具,先用气体压滤再机械加压成型、脱模得到湿颗粒预制件。将湿预制件加热到 800  $^{\circ}\text{C}$ ,恒温 3 h 进行烘干处理。压力浸渗时,预制件、模具分别在 800  $^{\circ}\text{C}$  和 280  $^{\circ}\text{C}$  预热,铝液浇注温度为 740  $^{\circ}\text{C}$ 。先将预制件置于模具中,再将铝液倒入,迅速加压至 80 MPa,保压 1 min 后脱模,得到  $\text{SiC}_p/\text{Al}$  复合材料坯料。

用 WDW-100 KN 型电子万能拉伸机对预制件进行了压缩试验。将  $\text{SiC}_p/\text{Al}$  复合材料坯料分为三

收稿日期:1999-12-13;修回日期:2000-04-03

熊德赣,1969 年出生,讲师,主要从事金属基复合材料的研究工作

层,每层取4个试样,用排水法测定试样的密度。用金相显微镜观察复合材料的微观组织形貌。采用预制件的抗压强度、复合材料不同部位密度的均匀性和复合材料宏观形貌及微观组织来评价颗粒预制件质量的好坏。

### 3 试验结果及分析

#### 3.1 粘接剂添加量对预制件压缩强度的影响

在预制件的压缩试验中,当压力增大到一定程度时,试样发生一声脆响,表明预制件中出现裂纹,同时其压力—变形图中出现第一个峰值,如图1所示,以第一个峰值对应的强度作为预制件的抗压强度。

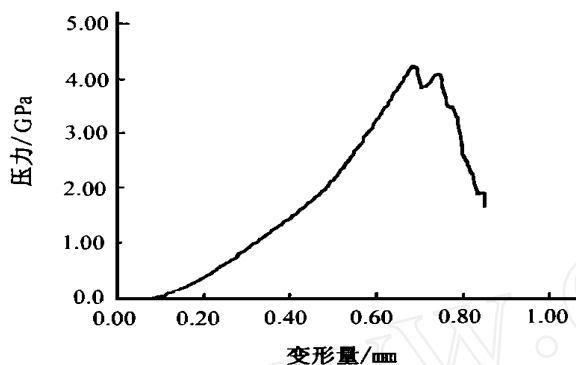


图1 预制件压力—变形图

Fig. 1 Typical pressure-deformation of preform

成型压强为15 MPa时,粘接剂添加量与3 μm单一粒径颗粒制成的预制件的抗压强度关系如图2所示。

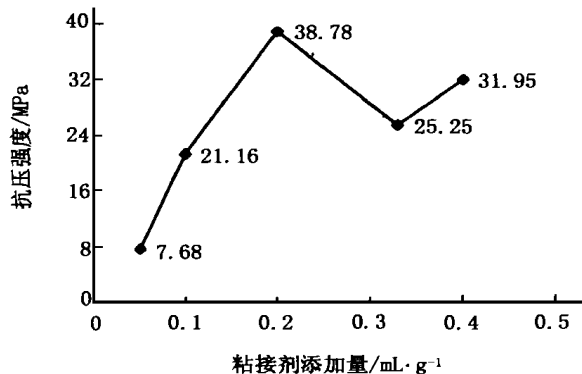


图2 粘接剂添加量对预制件抗压强度的影响

Fig. 2 Effect of adhesive amount on compressive strength of preforms

结果表明,当粘接剂的添加量从0.05 mL/g增加到0.2 mL/g时,预制件的抗压强度从7.68 MPa

增大到38.78 MPa,当粘接剂添加量继续增大时,预制件的抗压强度下降。当粘接剂的添加量少时,粘接剂可能不能完全裹覆颗粒,使颗粒间的粘接强度较低,因此预制件的抗压强度较低。当粘接剂的添加量过多,颗粒表面可能有较厚的粘接剂残留,由于残留物 $Al(PO_3)_3$ 的脆性很大,造成颗粒间的粘接强度也较低,使预制件较容易开裂,因而预制件的抗压强度较低。

用不同工艺制备复合材料时对预制件抗压强度的要求不同,因而对粘接剂种类及添加量的要求也不同。S. W. Lai等<sup>[3]</sup>用真空反压法制备体积分数为55%左右的 $SiC_p/Al$ 复合材料时,由于真空条件下预制件孔隙对铝液流动的阻力较小,所用浸渗压强仅为41 MPa,磷酸盐粘接剂的添加量为颗粒质量的0.1%,预制件的抗压强度小于10 MPa。本文用80 MPa浸渗压强制备 $SiC_p/Al$ 复合材料,为防止预制件在浸渗时开裂、破碎,要求预制件抗压强度尽可能高,因此磷酸盐粘接剂添加量应适当多一些。另一方面,从粘接剂对复合材料性能的考虑,希望以少用为好。综合上述因素,制备复合材料的预制件中粘接剂添加量取为0.2 mL/g,即为颗粒质量的1%左右。

#### 3.2 成型压强对预制件颗粒体积分数及抗压强度的影响

不同粒度组成,粘接剂添加量为0.2 mL/g时,成型压力对预制件的颗粒体积分数及抗压强度的影响如表1所示。

表1 成型压强对预制件的颗粒体积分数及压缩强度的影响

Tab. 1 Effect of applied pressure on SiC volume fraction and compressive strength of the resulting preforms

试样编号	成型压强 / MPa	粒径 / μm	颗粒体积分数 / %	预制件抗压强度 / MPa
A	0.5	3	43	24
B	0.5	3,28,63	59	30
C	5	3	46	44
D	15	3	49	50
E	30	3	51	64
F	60	3	53	66
G	120	3	55	68
H	60	3,28,63	66	80

从表1可知,颗粒组成相同时,随着成型压强的

增大,预制件颗粒体积分数和抗压强度逐步提高。随着成型压力增大,颗粒之间搭接更紧密,孔隙减少,因此颗粒体积分数逐渐增大,同时由于 SiC 颗粒的面积比例增大,使预制件的抗压强度增大。

试验采用的 SiC 颗粒具有粉体堆垛的自发聚集性,当成型压强只有 0.5 MPa 时,单一粒径颗粒制备的预制件的颗粒体积分数就已达到 43%。假设颗粒为等径球体,在最密堆积(立方或六方堆积)方式下,体积分数最高为 74%,而对于实际球体来说,无论怎样震动,等径球堆积体的体积分数总小于 63.1%<sup>[5]</sup>。SiC 颗粒实际为不规则的多边体,故最密堆积时体积分数可能高一些,但实际填充率亦很有限度。试验结果表明,当只用 3 μm 单一粒径颗粒时,即使将成型压强提高到 120 MPa,颗粒体积分数也只能达到 55%,而此时预制件的脱模十分困难,制备的预制件质量差。为了提高颗粒体积分数,必须采用多种粒径的颗粒混合成型。由表 1 可知,在同样条件下,由 3 种粒径混合制备的预制件的颗粒体积分数比单一粒径制备的大 24%~37%。

### 3.3 超声处理工艺对复合材料密度均匀性的影响

选取 3 μm、28 μm 和 63 μm 三种粒径的 SiC 颗粒,经两种不同超声处理工艺制备预制件,压渗后复合材料不同部位的密度结果如表 2 所示,表中试样编号的第一个数字表示试样层数,第二个数字表示试样位置,和 分别为试样密度和每层四个试样的平均密度, $S$  表示标准偏差。从表 2 可知,经工艺条件 1 处理所得复合材料中,无论是同一层内的试样,还是层与层之间的试样,其密度基本相同,标准偏差小,表明不同粒径的颗粒分布较均匀。经工艺条件 2 所得复合材料中,同一层内的试样密度相差不大,标准偏差也较小;但不同层间试样的密度相差较大,复合材料整体的标准偏差较大,表明复合材料中颗粒分布呈分层现象;显微观察发现密度大的这一层试样中含有较多的粗颗粒。在采用三种粒径的颗粒制备预制件时,粒径大的颗粒比粒径小的颗粒容易沉淀,因此,在超声处理过程中,采取有效措施使粒径不同的颗粒在混合液中均匀悬浮,才可确保不同粒径颗粒在预制件中分布均匀。

表 2 不同超声处理工艺制备复合材料的密度均匀性

Tab. 2 Density distribution in composites fabricated by varied ultrasonic processings of preforms

试样编号	工艺条件 1			工艺条件 2		
	/g cm <sup>-3</sup>	/g cm <sup>-3</sup>	$S$	/g cm <sup>-3</sup>	/g cm <sup>-3</sup>	$S$
1—1	3.039	3.039	0.0017	3.019	3.021	0.0029
1—2	3.040			3.023		
1—3	3.041			3.018		
1—4	3.037			3.024		
2—1	3.040	3.039	0.0017	3.018	3.022	0.0032
2—2	3.037			3.021		
2—3	3.038			3.024		
2—4	3.039			3.025		
3—1	3.039	3.040	0.0017	3.041	3.041	0.0021
3—2	3.039			3.043		
3—3	3.038			3.040		
3—4	3.042			3.038		
试样平均值及方差		3.039	0.0015		3.028	0.0098

### 3.4 复合材料截面形貌及微观组织

复合材料截面形貌如图 3 所示。图 3(a)是表 1

中 F 号预制件所得复合材料的截面形貌,图 3(b)是 B 号的截面形貌。B 号预制件的颗粒体积分数尽管

高达 59 % ,但由于成型压强小 ,颗粒间粘接强度较小 ,预制件的抗压强度只有 30 MPa ,压渗铸造过程中预制件开裂 ,因而复合材料截面有肉眼可见白色的铝合金网络 ,复合质量差。经较大压强成型的 F 号预制件抗压强度高 ,压渗铸造时预制件不开裂、变形较小 ,复合材料截面宏观质量好。

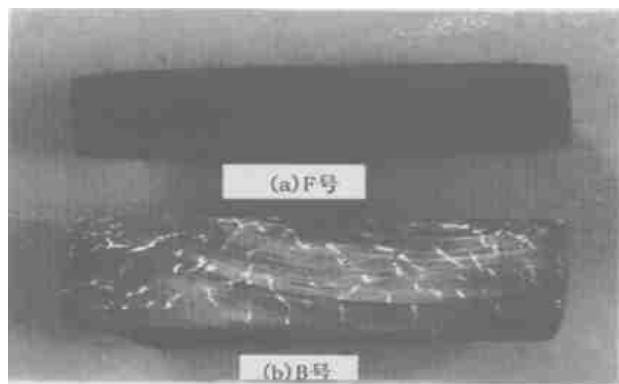
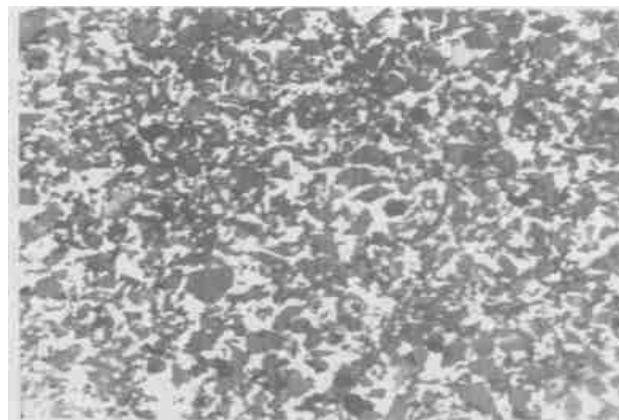


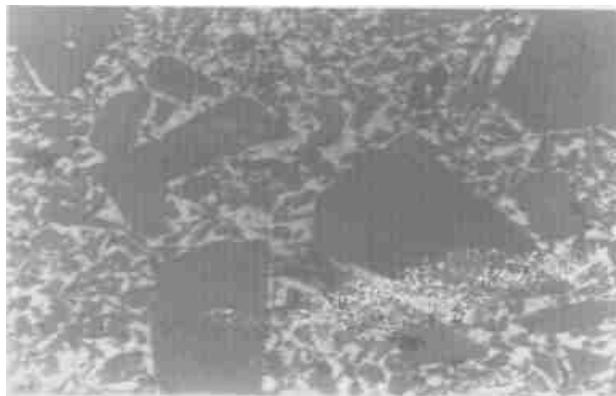
图 3 复合材料截面形貌

Fig. 3 Dissected disk of composite

用压力浸渗工艺制备高体积分数的  $\text{SiC}_p/\text{Al}$  复合材料时 ,主要工艺参数有浸渗压强、模具及预制件的预热温度、浇注温度和模具结构等。试验时发现 ,如果模具预热温度只有 280 ,铝液浇注后会很快在模具内壁及预制件表面凝固 ,使得预制件浸渗不完全。为此 ,必须对模具和工艺进行了相应的改进和调整 ,才能使铝液能够比较完全浸渗预制件 ,所制备的复合材料变形小 ,宏观质量和微观质量均较好。单一粒径和多种粒径的  $\text{SiC}_p/\text{Al}$  复合材料的显微组织如图 4 所示。



(a) 单一粒径 500 ×



(b) 多种粒径 500 ×

图 4  $\text{SiC}_p/\text{Al}$  复合材料微观组织

Fig. 4 Optical micrograph of  $\text{SiC}_p/\text{Al}$  composites

实验结果表明 ,只要压力浸渗工艺适当 ,不论是单一粒径还是多种粒径的预制件均可制备出颗粒分布均匀、无缺陷的复合材料。

#### 4 结论

(1) 粘接剂添加量影响预制件的抗压强度。其他条件相同时 ,粘接剂添加量为 0.2 mL/g 时 ,预制件的抗压强度最高。

(2) 成型压强和颗粒组成影响预制件的抗压强度和颗粒体积分数。其他条件相同时 ,成型压强越大 ,预制件的体积分数及抗压强度越高。

(3) 超声处理工艺影响多种粒径预制件中粗细颗粒的分布均匀性。

(4) 采用改进的压力浸渗工艺制备了体积分数为 43 % ~ 66 % ,宏观及微观质量均较好的  $\text{SiC}_p/\text{Al}$  基复合材料。

#### 参考文献

- 1 Zveben C. Advances in composite materials for thermal managements in electronic packaging. JOM, 1998; (6) :47 ~ 51
- 2 Chung D D L. Low thermal expansion composite for electronic packaging. In: Chung D D L ed. Materials for Electronic Packaging. Butter Heinemann, 1995; 3:127 ~ 143
- 3 Lai S W, Chung D D L. Fabrication of particulate aluminum-matrix composites by liquid metal infiltration. J. Mater. Sci., 1994; (29) :3 128 ~ 3 150
- 4 Premkumar M K, Yun D I, Sawtell R R. Advanced aluminum composites for high-performance applications in electronic packaging. In: Proceedings of the Society of Photo-optical Instrumentation Engineers. 1993; 2 105:399 ~ 404
- 5 陆厚根. 粉体工程导论. 上海: 同济大学出版社, 1993:135