

УДК 669.018.95

А.Н. Няфкин¹, А.А. Шавнев¹, В.М. Серпова¹, М.Г. Размахов¹, С.И. Пахомкин¹

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ВАКУУМНОЙ ТЕРМИЧЕСКОЙ ОБРАБОТКИ НА ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА КОМПОЗИЦИОННОГО МАТЕРИАЛА СИСТЕМЫ Al-SiC С ВЫСОКИМ СОДЕРЖАНИЕМ АРМИРУЮЩЕЙ ФАЗЫ

DOI: 10.18577/2307-6046-2020-0-11-60-67

Приведены результаты исследования влияния термической обработки на теплофизические свойства металлического композиционного материала (МКМ) на основе алюминиевого литейного сплава марки АК9ч (АЛ4) системы Al-Si-Mg, армированного частицами карбида кремния с содержанием армирующих частиц $69\pm 1\%$ (объемн.). МКМ изготовлен твердофазным методом с последующим вакуумным отжигом. Представлены также исследования теплофизических характеристик материала: теплопроводность, температурный коэффициент линейного расширения в диапазоне температур от 20 до 400 °С и плотность. Показано, что теплофизические характеристики зависят от структурных особенностей материала.

Ключевые слова: высоконаполненный металлический композиционный материал, горячее прессование порошков, порошки алюминиевого сплава, карбид кремния, температурный коэффициент линейного расширения, теплопроводность.

A.N. Nyafkin¹, A.A. Shavnev¹, V.M. Serpova¹, M.G. Razmakhov¹, S.I. Pakhomkin¹

INVESTIGATION OF IMPACT OF VACUUM HEAT TREATMENT ON THERMOPHYSICAL PROPERTIES OF COMPOSITE MATERIAL OF Al-SiC SYSTEM WITH HIGH CONTENT OF REINFORCING PHASE

The results of investigation of thermal treatment influence on thermophysical properties of metal composite material (MCM) based on aluminium casting alloy АК9ч (АЛ4) grade of Al-Si-Mg system reinforced with silicon carbide particles with content of reinforcing particles of $69\pm 1\%$ (volume) are given. MCM is made by solid-phase method followed by vacuum annealing. There are also presented studies of thermophysical characteristics of the material: thermal conductivity, temperature coefficient of linear expansion in the temperature range from 20 to 400 °C and density. It is shown that thermophysical characteristics depend on structural characteristics of the material.

Keywords: highly filled metal composite material, hot pressing of powders, powders of aluminium alloy, silicon carbide, temperature coefficient of linear expansion, thermal conductivity.

¹Федеральное государственное унитарное предприятие «Всероссийский научно-исследовательский институт авиационных материалов» Государственный научный центр Российской Федерации [Federal State Unitary Enterprise «All-Russian Scientific Research Institute of Aviation Materials» State Research Center of the Russian Federation]; e-mail: admin@viam.ru

Введение

В настоящее время в мире с помощью силовой электроники решаются такие глобальные проблемы, как энергосбережение, улучшение экологии и здоровья человека, повышение производительности труда, развитие научно-технического и оборонного потенциала страны, обеспечение качества электроэнергии, стабильности и надежности крупных энергетических систем.

Традиционными материалами для теплоотводящих оснований являются медь, алюминий, вольфрам/медь, молибден и др. Недостаток таких материалов – высокий температурный коэффициент линейного расширения (ТКЛР), по сравнению с ТКЛР основных компонентов – кремния и арсенида галлия, что приводит к необходимости использования в приборах различных переходных слоев и теплопроводящей пасты. С учетом того, что современные полупроводниковые приборы испытывают высокую тепловую нагрузку, перед разработчиками стоит задача по созданию новых высоко-теплопроводных композиционных материалов, не содержащих дорогих и дефицитных компонентов, но при этом обладающих высокой теплопроводностью, низкими ТКЛР и плотностью [1–4].

При использовании металлических композиционных материалов (МКМ) системы Al–SiC существенно улучшаются параметры и характеристики отечественных силовых полупроводниковых приборов, значительно повышаются их циклическая стойкость (в 100 раз) и надежность (срок службы увеличивается в 2 раза), что становится новым импульсом в развитии многих отраслей промышленности, транспорта, энергетики, военной, аэрокосмической и электронной техники.

Металлические композиционные материалы на основе алюминиевых сплавов, армированных частицами карбида кремния, сочетают такие характеристики, как высокие прочностные свойства и теплопроводность, низкие ТКЛР и плотность. Значительно повышаются рабочие температуры: с 200 °С (характерно для матричного сплава) до 300 °С. Кроме того, благодаря изменению размеров частиц и их объемного содержания, а также применению различных матричных сплавов на основе алюминия можно варьировать теплофизическими и механическими характеристиками, что крайне важно при создании систем с высокими эксплуатационными свойствами, в особенности при создании новых силовых полупроводниковых приборов. Таким образом, материалами, наиболее эффективными для использования в качестве теплоотводящих оснований, являются МКМ системы Al–SiC с варьирующимися теплофизическими и механическими характеристиками. Благодаря выбору размеров частиц, их соотношения, объемного содержания в матрице, матричного сплава можно варьировать ТКЛР в диапазоне от 5,8 до $20 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ и теплопроводностью в диапазоне от 170 до 255 Вт/(м·К) при плотности $< 3,1 \text{ г/см}^3$ [4].

За рубежом разработкой технологии изготовления подобного класса МКМ и изделий на его основе занимаются такие ведущие фирмы, как Thermal Transfer Composites, Ceramic Process systems (США). Для получения высокоточных профильных пористых заготовок, в том числе тонкостенных, данные компании используют технологию литья порошковых смесей под давлением. Эта технология позволяет минимизировать долю ручного труда, повысить производительность, а главное – обеспечить высокий выход годного, что в свою очередь приводит к снижению стоимости конечного продукта.

Современным решением проблемы значительного теплового расширения существующих теплопроводящих оснований силовой электроники, которое приводит к низкой надежности готовых полупроводниковых приборов, является создание высокоэффективных теплопроводящих материалов, имеющих минимальное тепловое расширение.

По существу, теплопроводность является энергопередающим процессом. В металлическом композиционном материале на основе алюминиевого сплава для передачи тепла матрица выступает в качестве свободного электрона, а армирующий компонент (карбид кремния) – в качестве фонона. Когда они соединены в один материал, то и электрон, и фонон действуют вместе в процессе теплопередачи. Распространение тепловой энергии внутри материала в твердом состоянии осуществляется посредством

фононов – частиц системы распространяемых в твердом теле звуковых волн, заменяющих в теоретическом построении концепции теплопередачи колебания атомов в кристаллической решетке. Дефекты, неоднородности в решетке, а также границы материала являются препятствиями на пути фононов, ограничивая теплопроводность всего материала [5].

Силовая электроника – одна из важнейших областей современной техники. В настоящее время наблюдается ее экстенсивное развитие, связанное с массовым переходом от старых технологий к приходящим им на смену новым. Среди всех типов приборов силовой электроники доминируют два – полевые и биполярные транзисторы с изолированным затвором (MOSFET и IGBT), а также интегрированные структуры на их основе – силовые интегральные схемы и гибридные сборки модулей [6].

Целью данной работы является исследование влияния вакуумного отжига МКМ на основе алюминиевого литейного сплава марки АК9ч (АЛ4) системы Al–Si–Mg, армированного частицами карбида кремния, на теплофизические характеристики – теплопроводность, ТКЛР и плотность.

Материалы и методы

Исследование характеристик проводили на образцах МКМ системы Al–SiC. В качестве матричного сплава использовали порошок алюминиевого сплава марки АК9ч (ГОСТ 1583–93), а в качестве армирующих частиц – порошок карбида кремния марки F220 с размером частиц 63–50 мкм (ГОСТ Р 52381–2005). Содержание армирующих частиц карбида кремния в МКМ составляло $69\pm 1\%$ (объемн.). Металлический композиционный материал изготавливали методом порошковой металлургии с использованием технологии горячего прессования порошков алюминия и карбида кремния при температурах, превышающих температуру солидус матричного сплава, с последующей различной вакуумной обработкой (отжигом) при температурах 590 ± 5 и 630 ± 5 °C [7, 8].

Фракционный состав исходных порошков оценивали по ГОСТ Р 8.777–2011 с помощью лазерного анализатора размера частиц Analysette 22 (компания Fritsch, Германия) [9].

Анализ микроструктуры проводили на растровом электронном микроскопе Hitachi SU 8010 (Япония), оснащенный энергодисперсионным спектрометром Oxford Instruments X-Max (80 мм²; Великобритания). Микрорентгеноспектральный анализ выполняли по ГОСТ Р ИСО 22309–2015 [10] при ускоряющем напряжении 25 кВ. Локальность микрорентгеноспектрального анализа составляла 1 мкм², глубина анализа 1 мкм. Изображения получали в режиме отраженных электронов.

Плотность измеряли с применением метода гидростатического взвешивания (СТП 1-595-17-374–98, ГОСТ 18898–89) [11]. Для определения характеристики использовали весы с погрешностью не более 0,001 г, также применяли разновесы, имеющие плотность не менее 7 г/см³, и емкость с жидкостью для погружения в нее образца с помощью корзины или проволоки из нержавеющей стали. В сосуд наливали деионизированную воду, предварительно дегазированную, в которую добавляли несколько капель вещества для улучшения смачиваемости. Плотность воды определяли согласно установленной температуре в помещении, измеренной с погрешностью до ± 1 °C (см. таблицу).

Образец помещали в корзину или подвешивали на проволоке и погружали в емкость с деионизированной водой. Образец должен быть полностью погружен в воду на глубину не менее 15 мм от его поверхности. Кроме того, не допускается образование пузырьков воздуха на образце. С целью удаления пузырьков образец предварительно погружали в жидкость. Погрешность взвешивания образца в воде должна быть $\pm 0,001$ г.

Плотность воды в зависимости от температуры в помещении

Температура		Плотность, г/см ³
К	°С	
288,0	15,0	0,9982
289,0	16,0	0,9978
290,0	17,0	0,9976
291,0	18,0	0,9975
292,0	19,0	0,9973
293,0	20,0	0,9971
294,0	21,0	0,9969
295,0	22,0	0,9966
296,0	23,0	0,9964
297,0	24,0	0,9962
298,0	25,0	0,9959
299,0	26,0	0,9957
300,0	27,0	0,9954
301,0	28,0	0,9951
302,0	29,0	0,9948
303,0	30,0	0,9945

Наиболее точным из применяемых методов измерений теплопроводности и температуропроводности является универсальный практически для всех классов материалов метод «лазерной вспышки», используемый в широком диапазоне температур – от 75 до 2800 К (ASTM E 1461–01, СТП 1-595-4-234–88) [12]. Этот метод особенно удобен из-за небольших размеров и простой геометрической формы образца, быстроты и простоты измерений (на одном приборе), а также подходит для измерения материалов, имеющих значительный диапазон значений температуропроводности в широком диапазоне температур.

Методика измерений охватывает определение температуропроводности и теплопроводности в первую очередь однородных изотропных твердых непрозрачных материалов, с особыми мерами предосторожности может использоваться для частично или полностью прозрачных материалов, а также применяется для получения приемлемых результатов и на пористых образцах. Поскольку величина пористости, форма, размеры и параметры пор влияют на температуропроводность, то следует проявлять крайнюю осторожность при анализе результатов.

Данная методика измерений применяется и для определения температуропроводности композиционных материалов. При существенной неоднородности и анизотропии, присутствующей в материале, результаты температуропроводности, полученные с помощью этого метода, могут иметь значительную погрешность. Тем не менее такие данные (при отсутствии абсолютной точности) полезны для сравнения материалов однотипной структуры. Особую осторожность необходимо проявлять при оценке теплопроводности, определяемой по величине температуропроводности, так как для композитов модель теплового потока существенно отличается от одноосного материала. Защитная камера с держателем образца, оснащенная печью или криостатом с системой управления и контроля, необходима для измерения температуропроводности образца выше и ниже комнатной температуры. Камера оснащена системой напуска инертного газа и вакуумирования, прозрачными окнами для прохождения излучения вспышки от источника и отведения излучения для оптического детектирования повышения температуры на задней поверхности образца. Кроме того, следует обеспечить защиту датчика температуры от прямого воздействия энергии излучения лазера

с использованием соответствующих диафрагм. Применяемые электронные фильтры и диафрагмы должны быть исправны и не должны искажать форму термограммы, а оптический датчик температуры должен быть юстирован по центру задней поверхности образца и защищен от энергии лазерного импульса для предотвращения повреждения или искажения термограммы. Однако, несмотря на применение диафрагмы, часть излучения энергии пучка может пройти над краями образца и попасть на датчик температуры.

Значение температуропроводности a рассчитывают, исходя из толщины образца и времени, необходимого для достижения на его задней поверхности температуры определенного процентного роста от максимального значения. Температуропроводность образца определяют в диапазоне температур – при повторении измерений при любой заданной температуре, и рассчитывают из выражения

$$a = \frac{1,38 \cdot L^2}{\pi^2 \cdot \tau_{1/2}} \quad (1)$$

или

$$a = 0,1388 \frac{L^2}{\tau_{1/2}}, \quad (2)$$

где $\tau_{1/2}$ – время, в течение которого температура на задней поверхности образца достигает половины своего максимального значения; L – толщина образца, мм.

Точность результатов измерений зависит от соответствия между математической и экспериментальной моделями [13, 14].

Измерения ТКЛР осуществляли по ASTM E228, ASTM E831, СТГ 1-595-17-374–98 на dilatометре DIL 402 C (фирма Netzsch, Германия) [15, 16] с использованием метода определения изменения длины твердого образца при тепловом расширении относительно деталей, выполненных из кварцевого стекла. Образец помещали в держатель между неподвижной опорой и толкателем, осуществляющим передачу его удлинения индуктивному датчику перемещений, который размещен в части конструкции, не подвергающейся нагреву и термостатируемой водой постоянной температуры, подаваемой из термостата. Измерения ТКЛР проводили в два этапа.

Первый этап заключался в измерении значений ТКЛР материала измерительной системы с использованием эталона ТКЛР из монокристаллического оксида алюминия в диапазоне температур от 20 до 400 °С. На данном этапе определяли ТКЛР опоры и толкателя из кварца, которые могут измениться после многократных нагревов.

На втором этапе производили нагрев самого образца при тех же условиях, что и на первом этапе. Главное требование к образцам – плоская поверхность торцов должна быть перпендикулярна продольной оси образца. Измерения ТКЛР проводили на образцах длиной 20 мм и диаметром 4 мм в инертной среде (Ar) с продувкой 50 мл/мин и скоростью нагрева 5 К/мин.

Результаты и обсуждение

Микроструктура исходных порошков представлена на рис. 1. Как видно, частицы порошка алюминиевого сплава имеют глобулярную форму, частицы порошка карбида кремния – чешуйчатые.

Измерение теплоемкости (c_p , Дж/(г·К)) проводили с постоянным нагревом образца со скоростью 3 К/мин в инертной среде (Ar) в диапазоне температур от 20 до 400 °С [17]. Результаты получены в пределах погрешности и описаны уравнением регрессии

$$c_p(T) = 0,668 + 1,67 \cdot 10^{-3} \cdot T - 1,81 \cdot 10^{-6} \cdot T^2, \quad (3)$$

где $20 \leq T \leq 400$, °С.

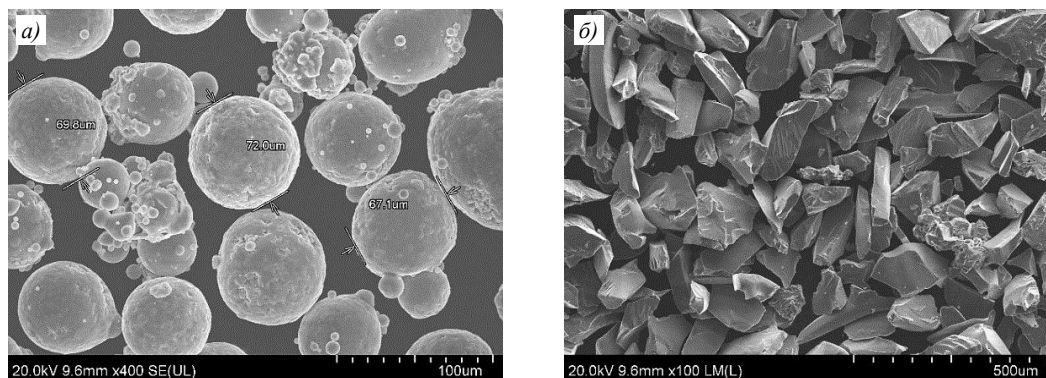


Рис. 1. Микроструктура исходных компонентов порошков алюминиевого сплава марки АК9ч (а) и карбида кремния марки F220 (б)

Теплопроводность МКМ определена по уравнению

$$\lambda = a \cdot c_p \cdot d, \quad (4)$$

где λ – теплопроводность, Вт/(м·К); a – температуропроводность, м²/с; d – плотность, г/см³.

Погрешность измерения температуропроводности составила не более 3%.

Теплопроводность композиционного материала представлена на рис. 2 и выражена уравнениями регрессии (3) и (4) с квадратическим средним отклонением <0,2% от результатов уравнения (4). Теплопроводность для материала с вакуумным отжигом составит:

– при температуре 590±5 °С

$$\lambda = 114,0,137 \cdot T - 7,71 \cdot 10^{-5} \cdot T^2 + 7,68 \cdot 10^{-7} \cdot T^3 - 9,35 \cdot 10^{-10} \cdot T^4; \quad (5)$$

– при температуре 630±5 °С

$$\lambda = 127,0,149 \cdot T + 7,14 \cdot 10^{-5} \cdot T^2 + 1,82 \cdot 10^{-7} \cdot T^3 - 2,08 \cdot 10^{-10} \cdot T^4. \quad (6)$$

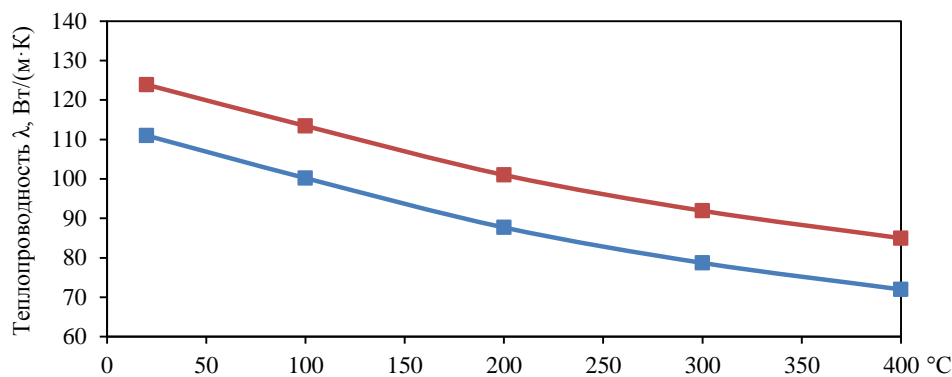


Рис. 2. Теплопроводность композиционного материала с вакуумным отжигом при температурах 590±5 (■) и 630±5 °С (■) в диапазоне температур от 20 до 400 °С

Определение плотности при температуре 20 °С композиционного материала на основе алюминиевого сплава марки АК9ч системы Al–Si–Mg с содержанием 69±1% (объемн.) порошка карбида SiC с вакуумным отжигом при температурах 590±5 и 630±5 °С [11] проводили методом гидростатического взвешивания с использованием весов GR-200 (компания AND, Япония). Результаты измерения плотности МКМ с различным вакуумным отжигом:

Вакуумный отжиг при температуре, °С	Плотность, г/см ³
590±5	2,91–2,88
630±5	2,94–2,91

Измерения ТКЛР композиционного материала системы Al–Si–Mg с содержанием $69\pm 1\%$ (объемн.) порошка карбида кремния с вакуумным отжигом при температурах 590 ± 5 и 630 ± 5 °C проводили в диапазоне температур от 20 до 400 °C [18].

Определение среднего значения ТКЛР композитов выполняли при нагревании в инертной среде (Ar) со скоростью 5 К/мин в диапазоне температур от 50 до 400 °C на dilatометре DIL 402 C (компания Netzsch, Германия) (рис. 3).

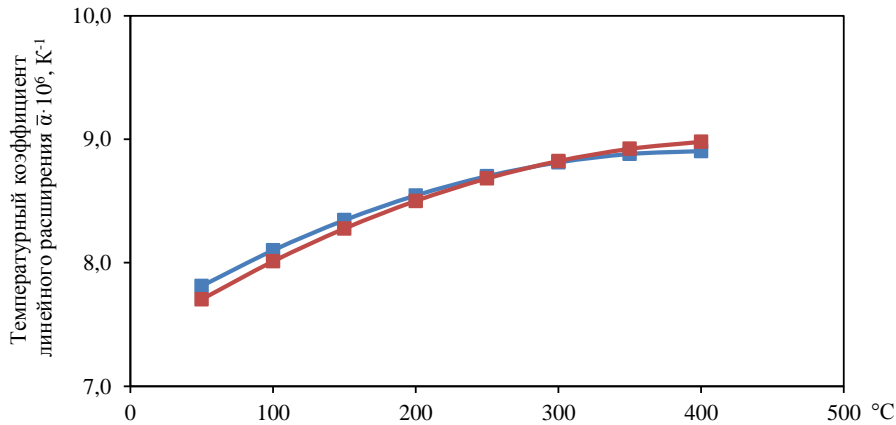


Рис. 3. Температурный коэффициент линейного расширения композиционного материала с вакуумным отжигом при температурах 590 ± 5 (■) и 630 ± 5 °C (■) в диапазоне температур от 50 до 400 °C

Результаты измерения ТКЛР исследованных МКМ в диапазоне температур от 50 до 400 °C с различным вакуумным отжигом описаны следующими уравнениями регрессии:

– при температуре 590 ± 5 °C

$$\bar{\alpha} \cdot 10^6 = 7,43 + 8,63 \cdot 10^{-3} \cdot T - 2,73 \cdot 10^{-5} \cdot T^2 + 7,37 \cdot 10^{-8} \cdot T^3 - 9,09 \cdot 10^{-11} \cdot T^4; \quad (7)$$

– при температуре 630 ± 5 °C

$$\bar{\alpha} \cdot 10^6 = 7,41 + 5,39 \cdot 10^{-3} \cdot T + 1,37 \cdot 10^{-5} \cdot T^2 - 8,54 \cdot 10^{-8} \cdot T^3 + 1,06 \cdot 10^{-10} \cdot T^4, \quad (8)$$

где $50 \leq T \leq 400$, °C; $\bar{\alpha}$ – среднее значение ТКЛР в диапазоне температур от 50 до T_i , °C.

Заключения

Проведенные исследования влияния вакуумного отжига на теплофизические характеристики МКМ показали, что повышение температуры вакуумного отжига приводит к увеличению теплопроводности МКМ на 10–15%, что связано с увеличением плотности и, как следствие, уменьшением пористости в материале. Изменения ТКЛР независимо от температуры вакуумного отжига не происходило.

Таким образом, теплофизические характеристики МКМ системы Al–SiC зависят от структурных особенностей материала, формирующихся как при изготовлении МКМ, так и при последующей его термической обработке.

Библиографический список

1. Каблов Е.Н. Инновационные разработки ФГУП «ВИАМ» ГНЦ РФ по реализации «Стратегических направлений развития материалов и технологий их переработки на период до 2030 года» // Авиационные материалы и технологии. 2015. №1 (34). С. 3–33. DOI: 10.18577/2071-9140-2015-0-1-3-33.
2. Каблов Е.Н. Композиты: сегодня и завтра // Металлы Евразии. 2015. №1. С. 36–39.
3. Каблов Е.Н., Чибиркин В.В., Вдовин С.М. Изготовление, свойства и применение теплоотводящих оснований из ММК Al–SiC в силовой электронике и преобразовательной технике // Авиационные материалы и технологии. 2012. №2. С. 20–23.

4. Няфкин А.Н., Лощинин Ю.В., Курбаткина Е.И., Косолапов Д.В. Исследование влияния фракционного состава карбида кремния на теплопроводность композиционного материала на основе алюминиевого сплава // Труды ВИАМ: электрон. науч.-техн. журн. 2019. №11 (83). Ст. 06. URL: <http://www.viam-works.ru> (дата обращения: 30.07.2020). DOI: 10.18577/2307-6046-2019-0-11-53-59.
5. Bereznoy V.L. Technological principles of maximizing strength in the case of production of press quenched Al–Mg–Si alloy extrusions // *Light Metal Age*. 2000. Vol. 58. No. 5–6. P. 46–53.
6. Igarashi T. Characteristics of the flow around a square prism // *Bulletin of Journal Series C Mechanical Systems*. 1984. Vol. 27. Issue 231. P. 1858–1865. DOI: 10.1299/jsme1958.27.1858.
7. Crowe C.R., Hasson D.F. *Strength Metals and Alloys* // *Proceedings of the 6th International Conference on Industrial Engineering (Melbourne, Aug. 16–20, 1982)*. 1982. Vol. 2. P. 859–862.
8. ГОСТ Р 8.777–2011. Государственная система обеспечения единства измерений (ГСИ). Дисперсный состав аэрозолей и взвесей. Определение размеров частиц по дифракции лазерного излучения. М.: Стандартинформ, 2019. 8 с.
9. ГОСТ Р 22309–2015 (ИСО 22309–2011). Государственная система обеспечения единства измерений. Микроанализ электронно-зондовый. Количественный анализ с использованием энергодисперсионной спектроскопии для элементов с атомным номером от 11 (Na) и выше. М.: Стандартинформ, 2015. 19 с.
10. ГОСТ 18898–89 (ИСО 2738–87). Изделия порошковые. Методы определения плотности, содержания масла и пористости. М.: Изд-во стандартов, 1990. 10 с.
11. ASTM E 1461–01. Standard test method for thermal diffusivity of solids by the flash method. 2001. P. 1–13. DOI: 10.1520/E1461-01.
12. Xue J., Taylor R. An evaluation of specific heat measurement methods using the laser flash technique // *International Journal of Thermophysics*. 1993. Vol. 14. No. 2. P. 313–320.
13. ГСССД 65–84. Корунд синтетический. Изобарная теплоемкость в диапазоне температур 4–2300 К. М.: Изд-во стандартов, 1985. 6 с.
14. ASTM E228. Standard test method for linear thermal expansion of solid materials with a push-rod dilatometer. 2017. P. 1–10. DOI: 10.1520/E0228-17.
15. ASTM E831. Standard test method for linear thermal expansion of solid materials by thermomechanical analysis. 2019. P. 1–5. DOI: 10.1520/E0831-19.
16. Parker W.J., Jenkins R.J., Butler C.P., Abbott G.L. Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity and thermal conductivity // *Journal of Applied Physics*. 1961. No. 32. P. 1679–1684.
17. Няфкин А.Н., Шавнев А.А., Курбаткина Е.И., Косолапов Д.В. Исследование влияния размера частиц карбида кремния на температурный коэффициент линейного расширения композиционного материала на основе алюминиевого сплава // Труды ВИАМ: электрон. науч.-техн. журн. 2020. №2 (86). Ст. 05. URL: <http://www.viam-works.ru> (дата обращения: 05.08.2020). DOI: 10.18577/2307-6046-2020-0-2-41-49.
18. Огородов Д.В., Трапезников А.В., Попов Д.А., Пентюхин С.И. Развитие литейных алюминиевых сплавов в ВИАМ (к 120-летию со дня рождения И.Ф. Колобнева) // Труды ВИАМ: электрон. науч.-техн. журн. 2017. №2 (50). Ст. 12. URL: <http://www.viam-works.ru> (дата обращения: 06.08.2020). DOI: 10.18577/2307-6046-2017-0-2-12-12.