

УДК 673.11; 661.665.1

ПОЛУЧЕНИЕ ОБЪЕМНЫХ ИЗДЕЛИЙ ИЗ МЕТАЛЛОМАТРИЧНОГО КОМПОЗИТА Cu-SiC ДЛЯ ЭНЕРГОЭФФЕКТИВНЫХ ТЕПЛОПРОВОДЯЩИХ СИСТЕМ

Никитин Дмитрий Сергеевич¹,
nikitindmsr@yandex.ru

Шаненков Иван Игоревич^{2,1},
i.i.shanenkov@utmn.ru

Насырбаев Артур¹,
arn1@tpu.ru

Вымпина Юлия Николаевна¹,
ynp2@tpu.ru

Орлова Евгения Георгиевна¹,
lafleur@tpu.ru

Ивашутенко Александр Сергеевич¹,
ivashutenko@tpu.ru

Сивков Александр Анатольевич^{1,3},
sivkov@tpu.ru

¹ Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

² Тюменский государственный университет,
Россия, 625003, г. Тюмень, ул. Ленина, 25.

³ Цзилиньский университет,
Китай, 130023, Чанчунь, ул. Цяньцзинь, 2699.

Актуальность исследования связана со стремительным развитием современных высокопроизводительных вычислительных систем, супернейрокомпьютеров и устройств искусственного интеллекта, которое сегодня сдерживается во многом из-за отсутствия эффективной системы охлаждения элементов высокомоощных устройств. Композитные материалы Cu-SiC с повышенными физико-механическими и теплофизическими характеристиками могут быть использованы для решения задач интенсификации теплоотвода.

Цель: получить объемные изделия из металломатричного композита Cu-10%SiC с повышенными физико-механическими и теплофизическими характеристиками методом искрового плазменного спекания.

Объекты: объемные изделия из металломатричного композита Cu-10%SiC. Образцы получены методом искрового плазменного спекания при температурах 700, 750, 800, 850 °С и давлении 60 МПа.

Методы: искровое плазменное спекание; рентгеновская дифрактометрия (рентгенофазовый анализ); сканирующая электронная микроскопия; индентирование; метод лазерной вспышки.

Результаты. Проведены экспериментальные исследования по получению объемных металломатричных композитов с медной матрицей и добавлением армирующих сверхтвердых частиц карбида кремния Cu-10%SiC. Проведено компактирование дисперсных композитных материалов путем искрового плазменного спекания при различных температурах 700, 750, 800 и 850 °С. Исследованы микроструктура и состав исходных дисперсных материалов и конечных объемных продуктов. Показано, что метод искрового плазменного спекания обладает преимуществами для получения относительно плотных материалов с высокими физико-механическими и теплофизическими свойствами. Анализ полученных образцов показал формирование плотной (до ~88 %) однородной мелкозернистой композитной структуры. Наибольшее уплотнение материала достигается при наибольшей температуре спекания 850 °С, что обуславливает для этого образца демонстрацию максимальных твердости ($H=3,63$ ГПа) и модуля Юнга ($E=159,63$ ГПа), а также коэффициента теплопроводности при комнатной температуре ($\lambda=223$ Вт/м·К). Полученные композитные материалы могут быть использованы в качестве конструкционных и функциональных материалов для энергоэффективных теплопроводящих систем.

Ключевые слова:

медь, карбид кремния, металломатричные композиты, искровое плазменное спекание, армирование, теплопроводность.

Введение

Развитие критически важных передовых цифровых интеллектуальных производственных технологий, систем обработки больших объемов данных, машинного оборудования и искусственного интеллекта сопровождается значительным ростом теплонапряженности подобного рода систем и устройств. Примерами таких систем являются радиаторы электронных систем, термосифоны, тонкопленочные теплообменные устройства. Особенно актуальным становится производство высокоэффективных теплопроводящих систем в свете развития других перспективных технологий. Так, одной из основных причин, сдерживающих массовое внедрение систем связи 5G, является

отсутствие надежных компактных систем обеспечения теплового режима со сроками безаварийной работы более 10 лет (способных отводить тепловые потоки около 1000 Вт/см²) [1, 2]. Это связано с фундаментальной проблемой теплофизики – необходимостью отвода тепловых потоков высокой плотности от теплонагруженного оборудования.

Наиболее перспективным решением проблемы является создание новых материалов, характеризующихся уникальными функциональными и конструкционными свойствами. Высокотехнологичные отрасли промышленности требуют легких компонентов с высокой теплопроводностью и низким коэффициентом теплового расширения [3–5]. Медь и сплавы на

основе меди благодаря высокой теплопроводности, пониженной коррозионной стойкости в среде агрессивных жидкостей и удовлетворительному сопротивлению усталости широко используются в различных инженерных приложениях, включая системы обеспечения теплового режима теплонагруженного оборудования, тепловые преобразователи, электрические компоненты и конструктивные детали [6, 7]. Тем не менее основным недостатком меди и ее сплавов является их низкая прочность и механические свойства.

Композитные материалы с металлической матрицей (или металломатричные композиты) с улучшенными физико-химическими, теплофизическими и механическими свойствами являются перспективными конструкционными материалами систем охлаждения, способных отводить тепловые потоки высокой плотности [8, 9]. Добавление керамических частиц, в особенности сверхтвердых материалов, к меди позволяет сочетать высокие механические и химические характеристики армирующей фазы и полезные теплофизические и электропроводящие свойства меди. Известны многочисленные составы композитов на основе меди и различных типов керамических частиц [10–14]. Среди наиболее важных керамических материалов, составляющих композиты с медью, выделяется карбид кремния SiC из-за его высоких твердости и теплопроводности, хорошей износостойкости и коррозионной стойкости, что значительно повышает прочность и износостойкость конечного объемного изделия без значительного ухудшения электрических и термических свойств меди [15, 16]. Таким образом, из-за высокой электро- и теплопроводности, высокой механической прочности и способности к обработке сваркой и пайкой композиты Cu-SiC привлекли большое внимание [17].

За прошедшие годы были разработаны различные технологии получения объемных композитных изделий на основе меди и керамических частиц SiC, характеризующиеся оптимизированной микроструктурой, механическими и тепловыми свойствами [18]. Наиболее распространено применение жидкофазных процессов, однако их применение приводит к ряду трудностей, которые ограничивают применение этих методов в производстве композитов на основе меди и керамических частиц [19]. К этим недостаткам относятся: агломерация керамических частиц во время механического перемешивания, осаждение керамических частиц, сегрегация вторичных фаз в металлической матрице, обширные межфазные реакции, разрушение керамических частиц во время механического перемешивания и проблемы обрабатываемости продуктов [20, 21]. Из-за этих проблем применяются различные способы предварительной активации и обработки исходного материала, что приводит к структурной однородности, возможности добавления большого количества армирующей фазы, возможности получения материала при более низкой температуре при сохранении микроструктуры исходного материала [22]. Кроме того, перспективным путем представляется применение для получения композитов Cu-SiC передового на сегодня метода искрового

плазменного спекания (spark plasma sintering – SPS), с использованием которого продемонстрированы оптимальное уплотнение и наилучшие механические свойства данных материалов [23, 24]. Тем не менее даже композиты Cu-SiC, полученные методом SPS, могут иметь некоторые недостатки, в том числе такие, как большие микроструктурные неоднородности в распределении частиц, наличие остаточной пористости и во многих случаях слабая связь между частицами и металлической матрицей [25]. Это отражается на конечных механических, электрических и тепловых свойствах получаемых изделий. Согласно литературным данным, сегодня актуальна задача разработки нетривиальных путей получения объемных композитов Cu-SiC. Такая задача, включающая подбор оптимального соотношения исходных материалов (в особенности микро- и нанодисперсных), надлежащих технологий спекания и соответствующих экспериментальных режимов, является актуальной в современном материаловедении.

В настоящей работе проведены экспериментальные исследования по получению объемных металломатричных композитов с медной матрицей и добавлением армирующих сверхтвердых частиц карбида кремния. Проведено компактирование дисперсных композитных материалов путем искрового плазменного спекания при различных температурах. Исследованы микроструктура и состав исходных дисперсных материалов и конечных объемных продуктов. Показано, что метод искрового плазменного спекания обладает преимуществами для получения относительно плотных материалов с высокими физико-механическими и теплофизическими свойствами. Результаты исследований, развитие которых сдерживается отсутствием эффективных, надежных и автономных систем, обеспечивающих требуемый температурный режим оборудования, могут быть использованы в многочисленных перспективных технологиях в микроэлектронике, авиационной, космической, нефтехимической промышленности.

Экспериментальная часть

В качестве исходных материалов для получения композитов Cu-SiC использовались коммерчески доступные порошки меди (ОСНУ, размер частиц 50–100 нм, чистота 98 %) и карбида кремния (ЛитПромАбразив, микрошлифпорошок SiC F1200, средний размер ~4,5 мкм, чистота >98 %). Выбор гранулометрического состава компонентов композита осуществлялся с учетом особенностей химической системы Cu-SiC, для которой свойственно растворение SiC в материале металлической матрицы при нагреве, что приводит к выпадению углерода в осадок. Таким образом, при выборе высокодисперсного SiC для спекания объемного изделия крайне высока вероятность растворения армирующего компонента, фазовых переходов, образования вторичных композитных фаз типа Cu-Si и, как следствие, ухудшения комплекса физико-механических и теплофизических характеристик, свойственных потенциальному композиту Cu-SiC [26]. Во избежание указанных побочных явлений

было принято решение использовать компоненты композита разной дисперсности, в частности армирующий компонент был использован в форме микронного порошка, что в целом подтверждается рядом исследований по спеканию материала Cu-SiC и смежных композитов, где намеренно используются компоненты разного гранулометрического состава [18, 27]. Порошки Cu и SiC смешивались при массовой концентрации SiC 10 % (что соответствует известным в литературе составам композитов [24, 25]) в изопропиловом спирте с применением ультразвуковой ванны (частота 40 кГц) до достижения однородного распределения армирующего компонента в металлической матрице и высушивались естественным образом. На рис. 1 изображен SEM-снимок дисперсного композитного образца, полученного при указанном режиме обработки, который подтверждает однородность распределения SiC в Cu. На снимке выделяются высокодисперсные контрастные частицы, часто сцепленные в агломераты, которые относятся к меди, и более крупные, контрастные и ограненные объекты микронных размеров, которые идентифицируются как карбид кремния.

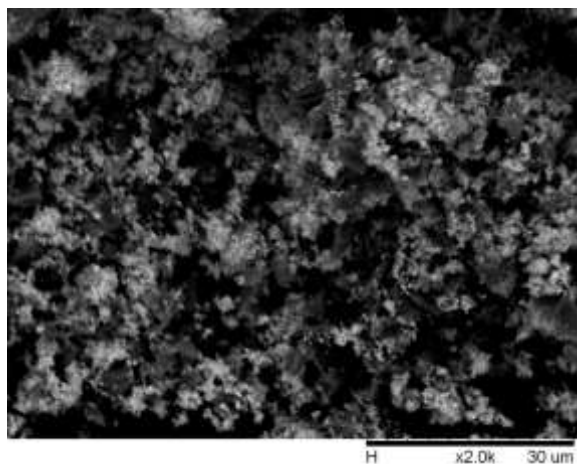


Рис. 1. SEM-снимок дисперсного композитного образца Cu-10%SiC, полученного путем обработки в ультразвуке

Fig. 1. SEM image of dispersed Cu-10%SiC composite obtained by sonication

Для получения объемных композитных материалов с металлической медной матрицей и с добавлением армирующих частиц SiC использовалась установка искрового плазменного спекания SPS 10-4 Thermal Technology, предназначенная для консолидации порошковых материалов и формирования объемных образцов при одновременном воздействии импульсного греющего тока и приложении внешнего давления. Образцы цилиндрической формы диаметром 12,7 мм и толщиной ~4 мм спекались в графитовой пресс-форме с графитовыми пуансонами. По литературным данным определено, что спекать композиты Cu-SiC и материалы на основе меди следует при температуре не менее 700 °C [18, 23, 28]. Для определения оптимальной температуры спекания проведена серия экспериментов по спеканию композитных материалов с

10 % массовым содержанием частиц карбида кремния в составе продукта при температурах спекания 700, 750, 800, 850 °C. Дальнейшее повышение температуры является крайне нежелательным в силу возможного расплавления меди и ее вытекания из пресс-формы. Компактирование образцов проведено при давлении $P=60$ МПа, времени выдержки $\Delta t=10$ мин, скорости нагрева $\Delta T/\Delta t=100$ °C/мин и естественном охлаждении.

Полученные объемные изделия из композита Cu-10%SiC подвергались дополнительной обработке для дальнейшего изучения микроструктуры поверхности, фазового состава, измерения механических и теплофизических характеристик. Сначала производилась шлифовка образцов (с использованием шлифовальной бумаги SiC 320, 600, 800, 1200), а затем их полировка (с использованием полировальных тканей 6, 3, 1, 0,25 мкм и соответствующих алмазных суспензий и смазок) с помощью шлифовально-полировального станка Forcipol 1V. Далее образцы исследовались методами рентгеновской дифрактометрии (с использованием рентгеновского дифрактометра Shimadzu XRD-7000, CuK α_1 -излучение, $\lambda_1=1,5406$ Å, $2\theta=10-90^\circ$, идентификация дифракционных пиков с помощью программы Crystallographica Search-Match и базы структурных данных PDF4+) и сканирующей электронной микроскопии (с использованием микроскопов Hitachi TM3000 и Quanta 200 3D с возможностью проведения энергодисперсионного анализа и определения элементного состава образцов). Механические характеристики покрытий изучали с помощью нанотвердомера Table Top Nanoindentation Tester (TTX-NHT) по методу Берковича и микротвердомера Galileo Durometer Isoscan HV2 OD по методу Виккерса по общепринятой методике (ASTM C1327-15, 2019). Значения нанотвердости и модуля упругости покрытия получены по кривой нагрузки-разгрузки с использованием метода Оливера-Фарра. Исследование теплопроводности полученных композитных образцов осуществлялось методом лазерной вспышки на анализаторе DLF 1200 (TA Instruments).

Результаты и обсуждение

При указанных ранее параметрах проведены эксперименты по получению объемных композитных материалов на основе Cu-10%SiC методом искрового плазменного спекания. В таблице приведены характеристики спекенных образцов в зависимости от температуры спекания: m – фактическая масса объемного образца, г; d – фактический диаметр объемного образца, мм; h – фактическая высота объемного образца, мм; ρ – плотность образца, г/см³; $\rho_{отн}$ – относительная плотность образца, %. Для определения теоретической плотности использовались величины плотностей для Cu и SiC, равные 8,96 и 3,21 г/см³, соответственно.

Как видно из представленных данных, повышение температуры спекания приводит к росту относительной плотности композитных материалов Cu/SiC. Значения находятся в диапазоне 83–88 %. Дальнейшее повышение температуры спекания (900 °C и выше) не представляется возможным в силу обнаруженного плавления и растекания меди по стенкам графитовой

пресс-форы, что не позволяет получить образец приемлемой геометрической формы и выдержать соотношение компонентов в конечных образцах. Данный эффект обусловлен присутствием наноразмерных частиц, которые могут переходить в жидкофазное состояние при температурах ниже классически установленной температуры плавления [28]. Внешне образцы ничем не отличаются, отсутствуют видимые сколы и повреждения.

Таблица. Характеристики композитных образцов Cu-10%SiC, полученных при разных температурах спекания

Table. Characteristics of Cu-10%SiC composite specimens obtained at different sintering temperatures

| T, °C | m, г/г | d, мм/мм | h, мм/мм | ρ , г/см ³ /г/см ³ | $\rho_{\text{отн.}}$ % |
|-------|--------|----------|----------|---|------------------------|
| 700 | 2,78 | 12,61 | 3,19 | 6,98 | 83,27 |
| 750 | 2,94 | 12,62 | 3,31 | 7,11 | 84,77 |
| 800 | 3,05 | 12,62 | 3,42 | 7,14 | 85,16 |
| 850 | 2,64 | 12,57 | 2,90 | 7,34 | 87,53 |

На рис. 2 представлены снимки сканирующей электронной микроскопии полированных поверхностей композитных образцов, полученных при разных температурах спекания. На представленных микроснимках при малом увеличении ($\times 100$) отчетливо видна структура поверхности образцов, которая, ожидаемо, демонстрирует различия в количестве пор. Так, поверхность образца, полученного при наименьшей температуре спекания, характеризуется максимальной локальной пористостью, что, по всей видимости, и сказывается на снижении общей относительной плотности образца. По мере увеличения температуры спекания количество пор значительно сокращается, что обусловлено формированием более равномерной медной матрицы, вследствие плавления всех присутствующих частиц с достаточно широким распределением по размерам (до единиц мкм при учете керамических частиц). Исходя из представленных данных, в качестве основного для дальнейших исследований может быть выбран режим с температурой спекания 850 °C, что обусловлено более высокой плотностью и меньшей пористостью образцов.

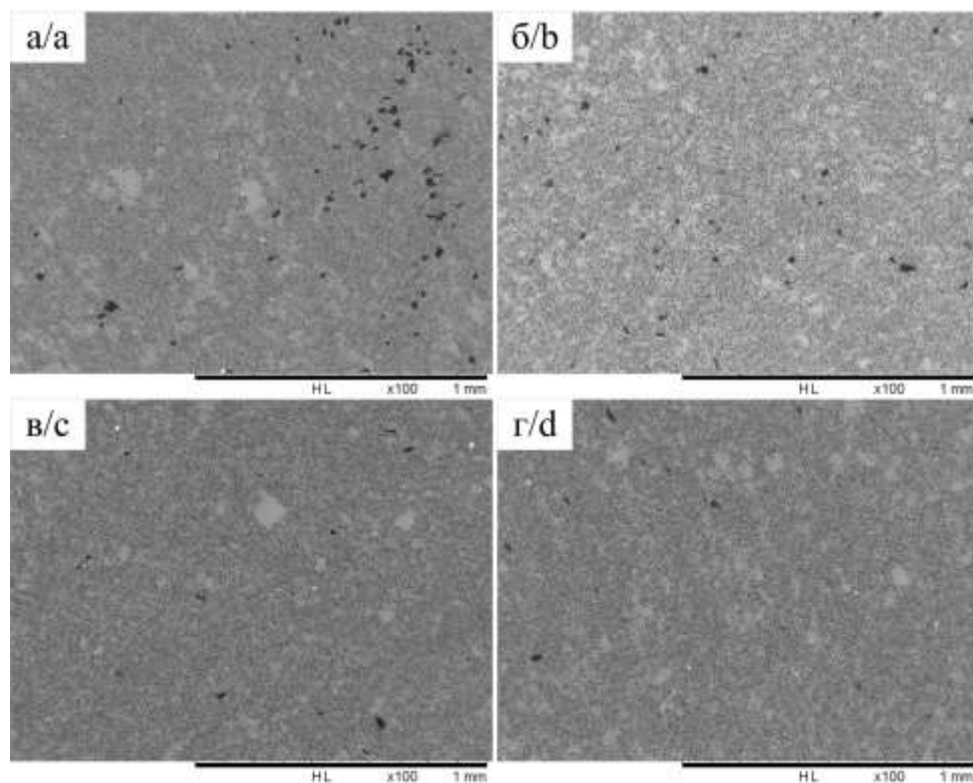


Рис. 2. SEM-снимки композитных образцов Cu-10%SiC, полученных методом искрового плазменного спекания при разных температурах (°C): а) 700; б) 750; в) 800; г) 850

Fig. 2. SEM images of Cu-10%SiC composite specimens obtained by spark plasma sintering at different sintering temperatures (°C): a) 700; b) 750; c) 800; d) 850

На рис. 3 представлены рентгеновские дифрактограммы полученных композитных материалов. Данные рентгенофазового анализа также подтверждают отсутствие каких-либо механизмов взаимодействия между медью и карбидом кремния в процессе спекания. Как видно, на дифрактограммах наблюдается четкое разделение максимумов Cu и SiC. Вероятно, в

результате формирования таких композитных материалов Cu-10%SiC должны улучшаться физико-механические свойства последнего за счет внедрения SiC при сохранении высоких теплофизических характеристик, характерных для меди. Изменение температуры спекания образцов при этом существенно не влияет на фазовый состав материалов.

Для исследования физико-механических свойств объемных композитных материалов использовался метод индентирования (пирамидка Берковича), основным результатом которого является значение твердости материала. Измерение твердости материалов является важнейшим исследованием, позволяющим оценить способность материала к сопротивлению деформирующим усилиям. Твердость материала является многофункциональным физическим свойством, зависящим от большого количества внутренних и внешних факторов. В процессе индентирования индентор проникает в образец до тех пор, пока не будет достигнута заданная максимальная нагрузка L_{\max} , где соответствующая глубина проникновения равна h_{\max} . По полученным результатам серии экспериментов по индентированию композитных образцов следует, что максимальные значения твердости ($H=3,63$ ГПа) и модуля Юнга ($E=159,63$ ГПа) достигаются для образца, полученного при температуре спекания $T=850$ °С, который обладает максимальной плотностью. Такой результат соответствует известным представлениям о прямой связи между твердостью материала и его степенью уплотнения. Полученные значения превосходят твердость чистой меди (от 0,4 до 1,6 ГПа для монокристаллической меди [29]).

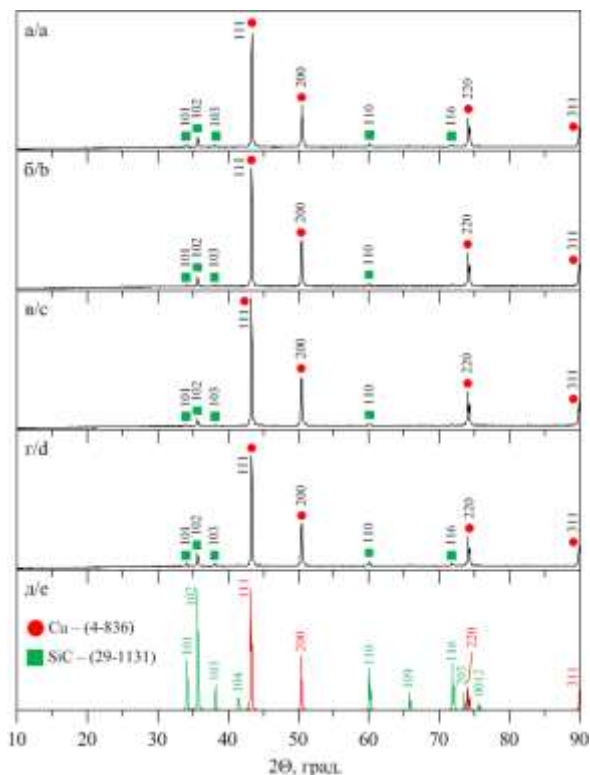


Рис. 3. Рентгеновские дифрактограммы композитных материалов Cu-10%SiC, полученных методом искрового плазменного спекания при разных температурах спекания (°С): а) 700; б) 750; в) 800; г) 850; д) эталонные спектры

Fig. 3. XRD patterns of Cu-10%SiC composite specimens obtained by spark plasma sintering at different sintering temperatures (°С): а) 700; б) 750; в) 800; г) 850; е) etalon spectra

Для композитных образцов также исследован комплекс теплофизических характеристик. На рис. 4 представлены результаты измерения коэффициента теплопроводности λ образцов, полученных при разных температурах спекания T , в температурном ходе. Полученные значения соответствуют известным литературным данным. Медь имеет очень высокий теоретический коэффициент теплопроводности $\lambda_{\text{теор}}=401$ Вт/м·К, однако экспериментально определяемая теплопроводность поликристаллических композитов на основе меди существенно ниже (до 360 Вт/м·К) [30]. Уменьшение теплопроводности в случае экспериментальных результатов относительно теоретических величин обусловлено повышенным рассеянием фононов в многозеренном образце [31]. На рассеяние фононов в поликристаллической керамике влияют внутренние свойства зерен, дефекты и наличие зернограничных фаз [32]. Последнее обстоятельство объясняет различия в коэффициенте теплопроводности полученной керамики, поскольку указанные виды добавок формируют межзеренные границы разных теплофизических свойств. В целом же теплофизические свойства объемных композитных материалов оказались достаточно высокими и сравнимыми с аналогами [7, 33, 34].

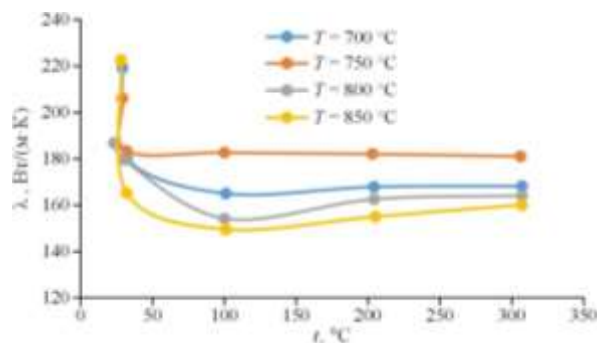


Рис. 4. Температурные зависимости коэффициента теплопроводности λ для композитных материалов Cu-10%SiC, полученных методом искрового плазменного спекания при разных температурах спекания

Fig. 4. Temperature dependences of the thermal conductivity coefficient λ of Cu-10%SiC composite specimens obtained by spark plasma sintering at different sintering temperatures

Максимальное значение коэффициента теплопроводности при комнатной температуре 223 Вт/м·К достигнуто для образца, полученного при температуре спекания $T=850$ °С. Именно этот образец существенно отличается от остальных образцов тем, что обладает максимальной плотностью ($\rho_{\text{отн}}=87,53$ %) и для него вполне применим представленный механизм теплопроводности, основанный на рассеянии фононов как носителей тепловых колебаний в структуре твердого тела, поскольку повышенная плотность способствует уменьшению степени рассеяния фононов на дефектах кристаллической решетки, в частности порах. В остальных случаях объяснение представляется более затруднительным ввиду того, что плотность и интегральная пористость не являются един-

ственными факторами, влияющими на теплофизические свойства материала. Поскольку различия плотности в остальных объемных композитах менее существенны (83,27–85,16 %), то в силу вступают иные факторы, влияющие на теплопроводность и являющиеся более трудноконтролируемыми, в том числе такие, как наличие локальных дефектов, границ фаз и зерен и образование локальных зернограничных фаз вследствие указанной ранее растворимости SiC в меди. Возможно, именно по этой причине в дальнейшем (при сравнении теплопроводности образцов в температурном ходе) наблюдаются повышенные значения теплопроводности именно для тех образцов, которые получены при меньшей температуре спекания. Таким образом удалось избежать локального растворения SiC в Cu. В целом характер изменения теплопроводности в температурном ходе объясняется нелинейным возрастанием амплитуды ангармонических колебаний узлов кристаллической решетки, вследствие чего возрастает вероятность столкновения дрейфующих фононов с этими узлами и понижается общая теплопроводность материалов, в дальнейшем сохраняющая относительно постоянные значения на промежутке от 100 до 300 °C [35].

Полученные композитные материалы с повышенными физико-механическими и теплофизическими характеристиками могут быть использованы в качестве конструкционных и функциональных материалов. С их помощью могут быть решены задачи интенсификации теплоотвода, нуклеации, увеличения коэффициента теплоотдачи и достижения наибольшей эффективности теплообмена, в том числе в условиях

воздействия высоких температур. Полученные результаты являются крайне актуальными в связи со стремительным развитием современных высокопроизводительных вычислительных систем, супернейрокомпьютеров и устройств искусственного интеллекта, которое сегодня сдерживается во многом отсутствием эффективной системы охлаждения элементов высокопроизводительных устройств.

Заключение

В результате выполненной работы проведены экспериментальные исследования по получению объемных металломатричных композитов с медной матрицей и добавлением 10 масс. % карбида кремния методом искрового плазменного спекания при температурах 700, 750, 800 и 850 °C. Анализ полученных образцов показал формирование плотной (до ~88 %) однородной мелкозернистой композитной структуры. Наибольшее уплотнение материала достигается при наибольшей температуре спекания 850 °C, что обуславливает для этого образца демонстрацию максимальных твердости ($H=3,63$ ГПа) и модуля Юнга ($E=159,63$ ГПа), а также коэффициента теплопроводности при комнатной температуре ($\lambda=223$ Вт/м·К). Полученные композитные материалы с повышенными физико-механическими и теплофизическими характеристиками могут быть использованы в качестве конструкционных и функциональных материалов для энергоэффективных теплопроводящих систем.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 21-73-10245, <https://rscf.ru/project/21-73-10245/>.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Coordinated optimization for energy efficient thermal management of 5G base station site / Y. Liu, Z. Xu, J. Wu, D. Wei, X. Guan // IFAC-PapersOnLine. – 2022. – V. 55. – № 11. – P. 102–107.
2. Enhanced thermal conductivity of epoxy composites with ternary particle size through the use of hybrid polyhedral α -alumina oxide and aluminum nitride / P. Li, Z. Ren, L. Ma, H. Gao, E. Xie, Z. Wang, J. Wu, Z. Guo // Ceramics International. – 2022. – V. 48. – № 23. – Part A. – P. 35251–35258.
3. Pomeroy M. Encyclopedia of materials: technical ceramics and glasses. – United States: Elsevier, 2021. – 2674 p.
4. Yang H., Ma L. 1D to 3D multi-stable architected materials with zero Poisson's ratio and controllable thermal expansion // Materials & Design. – 2020. – V. 188. – P. 108430.
5. Design of zero thermal expansion and high thermal conductivity in machinable xLFCS/Cu metal matrix composites / X. Pang, Y. Song, N. Shi, M. Xu, C. Zhou, J. Chen // Composites Part B: Engineering. – 2022. – V. 238. – P. 109883.
6. Chen T.F., Siow K.S. Comparing the mechanical and thermal-electrical properties of sintered copper (Cu) and sintered silver (Ag) joints // Journal of Alloys and Compounds. – 2021. – V. 866. – P. 158783.
7. Thermal conductivity and wear resistance of cold sprayed Cu-ceramic phase composite coating / Q. Chen, M. Yu, K. Cao, H. Chen // Surface and Coatings Technology. – 2022. – V. 434. – P. 128135.
8. Thermal conductivity of aluminum/graphene metal-matrix composites: from the thermal boundary conductance to thermal regulation / N. Wei, C. Zhou, Z. Li, B. Ou, K. Zhao, P. Yu, S. Li, J. Zhao // Materials Today Communications. – 2022. – V. 30. – P. 103147.
9. Manipulating in-situ discrete carbide interlayer to achieve high thermal conductivity in Cu-B/diamond composite / Y. Zhang, G. Bai, X. Zhu, J. Dai, X. Wang, J. Wang, M.J. Kim, H. Zhang // Materials Today Communications. – 2023. – V. 34. – P. 105357.
10. Akbarpour M.R., Mirabad H.M., Alipour S. Microstructural and mechanical characteristics of hybrid SiC/Cu composites with nano- and micro-sized SiC particles // Ceramics International. – 2019. – V. 45. – № 3. – P. 3276–3283.
11. Naser J., Riehemann W., Ferkel H. Dispersion hardening of metals by nanoscaled ceramic powders // Materials Science and Engineering: A. – 1997. – V. 234. – P. 467–469.
12. Thermal and mechanical properties of copper-graphite and copper-reduced graphene oxide composites / F. Nazeer, Z. Ma, L. Gao, F. Wang, M.A. Khan, A. Malik // Composites Part B: Engineering. – 2019. – V. 163. – P. 77–85.
13. Thankachan T., Prakash K.S., Kavimani V. Investigating the effects of hybrid reinforcement particles on the microstructural, mechanical and tribological properties of friction stir processed copper surface composites // Composites Part B: Engineering. – 2019. – V. 174. – P. 107057.
14. SiC-fibre reinforced copper as heat sink material for fusion applications / A. Brendel, C. Popescu, C. Leyens, J. Woltersdorf, E. Pippel, H. Bolt // Journal of Nuclear Materials. – 2004. – V. 329. – P. 804–808.
15. Влияние энергетики плазмодинамического синтеза в системе Si-C на фазовый состав и дисперсность продукта / А.А. Сивков, Д.С. Никитин, А.Я. Пак, И.А. Рахматуллин // Российские нанотехнологии. – 2015. – Т. 10. – № 1–2. – С. 34–39.
16. Glass waste derived silicon carbide synthesis via direct current atmospheric arc plasma / A.Ya. Pak, Z. Bolatova, D.S. Nikitin, A.P. Korchagina, N.A. Kalinina, A.S. Ivashutenko // Waste Management. – 2022. – V. 144. – P. 263–271.
17. Treichler R., Weissgaerber T., Kiendl T. TOFSIMS analysis of Cu-SiC composites for thermal management applications // Applied Surface Science. – 2006. – V. 252. – P. 7086–7088.

18. Akbarpour M.R. Effects of mechanical milling time on densification, microstructural characteristics and hardness of Cu-SiC nanocomposites prepared by conventional sintering process // *Materials Chemistry and Physics*. – 2021. – V. 261. – P. 124205.
19. Processing techniques for particulate-reinforced metal aluminium matrix composites / T.S. Srivatsan, I.A. Ibrahim, F.A. Mohamed, E.J. Lavernia // *Journal of Materials Science*. – 1991. – V. 26. – P. 5965–5978.
20. EDM machinability and parametric optimisation of 2014Al/Al₂O₃ composite by RSM / A. Khajuria, R. Bedi, B. Singh, M. Akhtar // *International Journal of Machining and Machinability of Materials*. – 2018. – V. 20. – P. 536–555.
21. Influence of ceramic Al₂O₃ particulates on performance measures and surface characteristics during sinker EDM of stir cast AMMCs / A. Khajuria, M. Akhtar, M.K. Pandey, M.P. Singh, A. Raina, R. Bedi et al. // *World Journal of Engineering*. – 2021. – V. 16. – P. 526–538.
22. Rajmohan T., Palanikumar K., Arumugam S. Synthesis and characterization of sintered hybrid aluminium matrix composites reinforced with nanocopper oxide particles and microsilicon carbide particles // *Composites Part B: Engineering*. – 2014. – V. 59. – P. 43–49.
23. Effect of spark plasma sintering and high-pressure torsion on the microstructural and mechanical properties of a Cu-SiC composite / P. Bazarnik, S. Nosewicz, B. Romelczyk-Baishya, M. Chmielewski, A.S. Nędza, J. Maj et al. // *Materials Science and Engineering: A*. – 2019. – V. 766. – P. 138350.
24. Microstructure and thermal properties of Cu-SiC composite materials depending on the sintering technique / M. Chmielewski, K. Pietrzak, A.S. Nędza, K. Kaszyca, R. Zybala, P. Bazarnik et al. // *Science of Sintering*. – 2017. – V. 49. – P. 11–22.
25. Impact of the SiC addition on the morphological, structural and mechanical properties of Cu-SiC composite powders prepared by high energy milling / N.T. Câmara, R.A. Raimundo, C.S. Lourenço, L.M.F. Morais, D.D.S. Silva et al. // *Advanced Powder Technology*. – 2021. – V. 32. – № 8. – P. 2950–2961.
26. Processing of wood-derived copper-silicon carbide composites via electrodeposition / K.E. Pappacena, M.T. Johnson, S. Xie, K.T. Faber // *Composites Science and Technology*. – 2010. – V. 70. – P. 485–491.
27. Microstructure and compressibility of SiC nanoparticles reinforced Cu nanocomposite powders processed by high energy mechanical milling / M.R. Akbarpour, E. Salahi, F.A. Hesari, A. Simchi, H.S. Kim // *Ceramics International*. – 2014. – V. 40. – № 1. – P. 951–960.
28. Akbarpour M.R., Alipour S. Wear and friction properties of spark plasma sintered SiC/Cu nanocomposites // *Ceramics International*. – 2017. – V. 43. – № 16. – P. 13364–13370.
29. Evaluation of irradiation hardening in ODS-Cu and non ODS-Cu by nanoindentation hardness test and micro-pillar compression test after self-ion irradiation / Y. Liu, S. Kondo, H. Yu, K. Yabuuchi, R. Kasada // *Nuclear Materials and Energy*. – 2021. – V. 26. – P. 100903.
30. Superior thermal conductivity of layered RGO/Cu composites by multi-step electrodeposition / Z. Yin, J. Chen, Z. Qin, Y. Wang, Z. Wu // *Journal of Alloys and Compounds*. – 2022. – V. 918. – P. 165634.
31. Lee H.-G. et al. Thermal conductivity analysis of SiC ceramics and fully ceramic microencapsulated fuel composites // *Nuclear Engineering and Design*. – 2017. – V. 311. – P. 9–15.
32. Watari K. et al. Effect of grain boundaries on thermal conductivity of silicon carbide ceramic at 5 to 1300 K // *Journal of the American Ceramic Society*. – 2003. – V. 86. – № 10. – P. 1812–1814.
33. Huang J., Tayyebi M., Assari A.H. Effect of SiC particle size and severe deformation on mechanical properties and thermal conductivity of Cu/Al/Ni/SiC composite fabricated by ARB process // *Journal of Manufacturing Processes*. – 2021. – V. 68. – Part B. – P. 57–68.
34. Thermal conductivity of Cu-matrix composites reinforced with coated SiC particles: Numerical modeling and experimental verification / W. Węglewski, P. Pitchai, M. Chmielewski, P.J. Guruprasad, M. Basista // *International Journal of Heat and Mass Transfer*. – 2022. – V. 188. – P. 122633.
35. Feng T., Lindsay L., Ruan X. Four-phonon scattering significantly reduces intrinsic thermal conductivity of solids // *Physical Review B*. – 2017. – V. 96. – № 16. – P. 161201.

Поступила 08.02.2023 г.

Прошла рецензирование: 16.03.2023 г.

Информация об авторах

Никитин Д.С., кандидат технических наук, доцент отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Шаненков И.И., кандидат технических наук, заведующий лабораторией ресурсоэффективных технологий термической переработки биомассы Института экологической и сельскохозяйственной биологии (Х-БИО) Тюменского государственного университета; младший научный сотрудник Лаборатории перспективных материалов энергетической отрасли Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Насырбаев А., инженер организационного отдела Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Вымпина Ю.Н., кандидат технических наук, ассистент отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Орлова Е.Г., кандидат физико-математических наук, доцент Научно-образовательного центра И.Н. Бутакова Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Ивашутенко А.С., кандидат технических наук, доцент отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Сивков А.А., доктор технических наук, профессор отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета; профессор, Цилинский университет.

UDC 673.11; 661.665.1

OBTAINING BULK PRODUCTS FROM Cu-SiC METAL-MATRIX COMPOSITE FOR ENERGY-EFFICIENT HEAT-CONDUCTING SYSTEMS

Dmitry S. Nikitin¹,
nikitindmsr@yandex.ru

Ivan I. Shanenkov^{2,1},
i.i.shanenkov@utmn.ru

Artur Nassyrbayev¹,
arn1@tpu.ru

Yuliya N. Vympina¹,
ynp2@tpu.ru

Evgeniya G. Orlova¹,
lafleur@tpu.ru

Alexander S. Ivashutenko¹,
ivashutenko@tpu.ru

Alexander A. Sivkov^{1,3},
sivkov@tpu.ru

¹ National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

² Tyumen State University,
25, Lenin street, Tyumen, 625003, Russia.

³ Jilin University,
2699, Qianjin street, Changchun, 130023, China

The relevance of the research is associated with the rapid development of modern high-performance computing systems, superneuro-computers and artificial intelligence devices. Today such development is held back largely due to the lack of an effective cooling system for high-power elements of their structures. Composite materials Cu-SiC with improved physical, mechanical and thermophysical characteristics can be used to solve problems of heat removal intensification.

The main aim of the research is to obtain bulk products from metal-matrix composite Cu-10%SiC with improved physical, mechanical and thermal characteristics by spark plasma sintering.

Objects of the research are bulk products from metal-matrix composite Cu-10%SiC. The samples were obtained by spark plasma sintering at temperatures of 700, 750, 800, 850 °C and a pressure of 60 MPa.

Methods: spark plasma sintering, X-ray diffractometry (X-ray phase analysis), scanning electron microscopy, indentation, laser flash method.

Results. Experimental studies have been carried out to obtain bulk metal-matrix composites with a copper matrix and the addition of reinforcing superhard particles of silicon carbide Cu-10%SiC. The compaction of dispersed composite materials was carried out by spark plasma sintering at various temperatures of 700, 750, 800, and 850 °C. The microstructure and composition of initial dispersed materials and final bulk products have been studied. It is shown that the spark plasma sintering method has advantages for obtaining relatively dense materials with high physical, mechanical and thermal properties. Analysis of the obtained samples showed the formation of a dense (up to ~88 %) homogeneous fine-grained composite structure. The greatest densification of the material is achieved at the highest sintering temperature of 850 °C, which causes this sample to demonstrate the maximum hardness ($H=3,63$ GPa) and Young's modulus ($E=159,63$ GPa), as well as the thermal conductivity at room temperature ($\lambda=223$ W/m K). The obtained composite materials can be used as structural and functional materials for energy-efficient heat-conducting systems.

Key words:

copper, silicon carbide, metal matrix composites, spark plasma sintering, reinforcement, thermal conductivity.

This work was supported by the Russian Science Foundation, grant number 21-73-10245, <https://rscf.ru/project/21-73-10245/>.

REFERENCES

- Liu Y., Xu Z., Wu J., Wei D., Guan X. Coordinated Optimization for Energy Efficient Thermal Management of 5G Base Station Site. *IFAC-PapersOnLine*, 2022, vol. 55, no. 11, pp. 102–107.
- Li P., Ren Z., Ma L., Gao H., Xie E., Wang Z., Wu J., Guo Z. Enhanced thermal conductivity of epoxy composites with ternary particle size through the use of hybrid polyhedral α -alumina oxide and aluminum nitride. *Ceramics International*, 2022, vol. 48, no. 23, Part A, pp. 35251–35258.
- Pomeroy M. *Encyclopedia of materials: technical ceramics and glasses*. United States, Elsevier, 2021. 2674 p.
- Yang H., Ma L. 1D to 3D multi-stable architected materials with zero Poisson's ratio and controllable thermal expansion. *Materials & Design*, 2020, vol. 188, pp. 108430.
- Pang X., Song Y., Shi N., Xu M., Zhou C., Chen J. Design of zero thermal expansion and high thermal conductivity in machinable xLFCS/Cu metal matrix composites. *Composites Part B: Engineering*, 2022, vol. 238, pp. 109883.
- Chen T.F., Siow K.S. Comparing the mechanical and thermal-electrical properties of sintered copper (Cu) and sintered silver (Ag) joints. *Journal of Alloys and Compounds*, 2021, vol. 866, pp. 158783.
- Chen Q., Yu M., Cao K., Chen H. Thermal conductivity and wear resistance of cold sprayed Cu-ceramic phase composite coating. *Surface and Coatings Technology*, 2022, vol. 434, pp. 128135.
- Wei N., Zhou C., Li Z., Ou B., Zhao K., Yu P., Li S., Zhao J. Thermal conductivity of aluminum/graphene metal-matrix composites: from the thermal boundary conductance to thermal regulation. *Materials Today Communications*, 2022, vol. 30, pp. 103147.
- Zhang Y., Bai G., Zhu X., Dai J., Wang X., Wang J., Kim M.J., Zhang H. Manipulating in-situ discrete carbide interlayer to achieve high thermal conductivity in Cu-B/diamond composite. *Materials Today Communications*, 2023, vol. 34, pp. 105357.

10. Akbarpour M.R., Mirabad H.M., Alipour S. Microstructural and mechanical characteristics of hybrid SiC/Cu composites with nano- and micro-sized SiC particles. *Ceramics International*, 2019, vol. 45, no. 3, pp. 3276–3283.
11. Naser J., Riehemann W., Ferkel H. Dispersion hardening of metals by nanoscaled ceramic powders. *Materials Science and Engineering: A*, 1997, vol. 234, pp. 467–469.
12. Nazeer F., Ma Z., Gao L., Wang F., Khan M.A., Malik A. Thermal and mechanical properties of copper-graphite and copper-reduced graphene oxide composites. *Composites Part B: Engineering*, 2019, vol. 163, pp. 77–85.
13. Thankachan T., Prakash K.S., Kavimani V. Investigating the effects of hybrid reinforcement particles on the microstructural, mechanical and tribological properties of friction stir processed copper surface composites. *Composites Part B: Engineering*, 2019, vol. 174, pp. 107057.
14. Brendel A., Popescu C., Leyens C., Woltersdorf J., Pippel E., Bolt H. SiC-fibre reinforced copper as heat sink material for fusion applications. *Journal of Nuclear Materials*, 2004, vol. 329, pp. 804–808.
15. Sivkov A.A., Nikitin D.S., Pak A.Y., Rakhmatullin I.A. Influence of plasmodynamic synthesis energy in Si-C system on the product phase composition and dispersion. *Nanotechnologies in Russia*, 2015, vol. 10, no. 1–2, pp. 34–41.
16. Pak A.Ya., Bolatova Z., Nikitin D.S., Korchagina A.P., Kalinina N.A., Ivashutenko A.S. Glass waste derived silicon carbide synthesis via direct current atmospheric arc plasma. *Waste Management*, 2022, vol. 144, p. 263–271.
17. Treichler R., Weissgaerber T., Kiendl T. TOFSIMS analysis of Cu-SiC composites for thermal management applications. *Applied Surface Science*, 2006, vol. 252, pp. 7086–7088.
18. Akbarpour M.R. Effects of mechanical milling time on densification, microstructural characteristics and hardness of Cu-SiC nanocomposites prepared by conventional sintering process. *Materials Chemistry and Physics*, 2021, vol. 261, pp. 124205.
19. Srivatsan T.S., Ibrahim I.A., Mohamed F.A., Lavernia E.J. Processing techniques for particulate-reinforced metal aluminium matrix composites. *Journal of Materials Science*, 1991, vol. 26, pp. 5965–5978.
20. Khajuria A., Bedi R., Singh B., Akhtar M. EDM machinability and parametric optimisation of 2014Al/Al₂O₃ composite by RSM. *International Journal of Machining and Machinability of Materials*, 2018, vol. 20, pp. 536–555.
21. Khajuria A., Akhtar M., Pandey M.K., Singh M.P., Raina A., Bedi R. Influence of ceramic Al₂O₃ particulates on performance measures and surface characteristics during sinker EDM of stir cast AMMCs. *World Journal of Engineering*, 2021, vol. 16, pp. 526–538.
22. Rajmohan T., Palanikumar K., Arumugam S. Synthesis and characterization of sintered hybrid aluminium matrix composites reinforced with nanocopper oxide particles and microsilicon carbide particles. *Composites Part B: Engineering*, 2014, vol. 59, pp. 43–49.
23. Bazamik P., Nosewicz S., Romelczyk-Baishya B., Chmielewski M., Nędza A.S., Maj J., et al. Effect of spark plasma sintering and high-pressure torsion on the microstructural and mechanical properties of a Cu-SiC composite. *Materials Science and Engineering: A*, 2019, vol. 766, pp. 138350.
24. Chmielewski M., Pietrzak K., Nędza A.S., Kaszyca K., Zybała R., Bazarnik P. Microstructure and thermal properties of Cu-SiC composite materials depending on the sintering technique. *Science of Sintering*, 2017, vol. 49, pp. 11–22.
25. Câmara N.T., Raimundo R.A., Lourenço C.S., Morais L.M.F., Silva D.D.S. Impact of the SiC addition on the morphological, structural and mechanical properties of Cu-SiC composite powders prepared by high energy milling. *Advanced Powder Technology*, 2021, vol. 32, no. 8, pp. 2950–2961.
26. Pappacena K.E., Johnson M.T., Xie S., Faber K.T. Processing of wood-derived copper-silicon carbide composites via electrodeposition. *Composites Science and Technology*, 2010, vol. 70, pp. 485–491.
27. Akbarpour M.R., Salah E., Hesari F.A., Simchi A., Kim H.S. Microstructure and compressibility of SiC nanoparticles reinforced Cu nanocomposite powders processed by high energy mechanical milling. *Ceramics International*, 2014, vol. 40, no. 1, pp. 951–960.
28. Akbarpour M.R., Alipour S. Wear and friction properties of spark plasma sintered SiC/Cu nanocomposites. *Ceramics International*, 2017, vol. 43, no. 16, pp. 13364–13370.
29. Liu Y., Kondo S., Yu H., Yabuuchi K., Kasada R. Evaluation of irradiation hardening in ODS-Cu and non ODS-Cu by nanoindentation hardness test and micro-pillar compression test after self-ion irradiation. *Nuclear Materials and Energy*, 2021, vol. 26, pp. 100903.
30. Yin Z., Chen J., Qin Z., Wang Y., Wu Z. Superior thermal conductivity of layered RGO/Cu composites by multi-step electrodeposition. *Journal of Alloys and Compounds*, 2022, vol. 918, pp. 165634.
31. Lee H.-G. Thermal conductivity analysis of SiC ceramics and fully ceramic microencapsulated fuel composites. *Nuclear Engineering and Design*, 2017, vol. 311, pp. 9–15.
32. Watari K. et al. Effect of grain boundaries on thermal conductivity of silicon carbide ceramic at 5 to 1300 K. *Journal of the American Ceramic Society*, 2003, vol. 86, no. 10, pp. 1812–1814.
33. Huang J., Tayyebi M., Assari A.H. Effect of SiC particle size and severe deformation on mechanical properties and thermal conductivity of Cu/Al/Ni/SiC composite fabricated by ARB process. *Journal of Manufacturing Processes*, 2021, vol. 68, Part B, pp. 57–68.
34. Wegleński W., Pitchai P., Chmielewski M., Guruprasad P.J., Basista M. Thermal conductivity of Cu-matrix composites reinforced with coated SiC particles: numerical modeling and experimental verification. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2022, vol. 188, pp. 122633.
35. Feng T., Lindsay L., Ruan X. Four-phonon scattering significantly reduces intrinsic thermal conductivity of solids. *Physical Review B*, 2017, vol. 96, no. 16, pp. 161201.

Received: 8 February 2023.

Reviewed: 16 March 2023.

Information about the authors

Dmitry S. Nikitin, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Ivan I. Shanenkov, Cand. Sc., head of the laboratory, Tyumen State University; junior researcher, National Research Tomsk Polytechnic University.

Artur Nassyrbayev, engineer, National Research Tomsk Polytechnic University.

Yuliya N. Vympina, Cand. Sc., assistant, National Research Tomsk Polytechnic University.

Evgeniya G. Orlova, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Alexander S. Ivashutenko, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Alexander A. Sivkov, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University; professor, Jilin University.