

УДК 537

Монтассер С.Тахат



Монтассер С. Тахат

Университет прикладных наук Аль-Балка, Университетский колледж  
Аль-Хусон, Кафедра машиностроения, п/я 50, Аль-Хусон 21510,  
Ирбид, Иордания

**МЕХАНИЧЕСКИЕ И ТЕРМОЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА  
МНОГОСЛОЙНОГО ГИБРИДНОГО КОМПОЗИТА  
Cu/SiC/Gr С МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ МАТРИЦЕЙ**

---

*Комбинированный эффект содержания графита и SiC в матрице Cu был изучен при изготовлении многослойных и однослойных композитов методами порошковой металлургии. При одновременном введении в чистую медь равных весовых долей 3%, 6%, 9% и 12% SiC и частиц Gr механические свойства композитов улучшаются, тогда как электропроводность ухудшается. Многослойные композиты повышают износостойкость и улучшают характеристики трения. Коэффициент теплового расширения может эффективно снижаться благодаря хорошей связи между упрочняющей фазой и металлической матрицей. С ростом содержания графита и SiC электропроводность снижается. Эти однослойные и многослойные гибридные металлические композиты будут иметь хорошую перспективу для применения в электрических контактах, тепловых и электронных упаковках, фрикционных материалах и тормозах.*

**Ключевые слова:** Cu-Gr/SiC, гибридные композиты с металлической матрицей, многослойные композиты.

*Combined effect of both graphite and SiC content into Cu matrix has been studied during fabrication of Cu-graphite-SiC multilayer and single-layer composites by powder metallurgy. Mechanical properties of the composites are enhanced by simultaneous addition of equal weight fraction of SiC and Gr particulates of 3%, 6%, 9%, and 12% reinforcement into pure Cu, whereas electrical conductivity deteriorates. Multi-layer composites enhanced the wear resistance and improved the friction performance. The CTE could be decreased effectively through well bonding between reinforcement phase and metal matrix. Electrical conductivity decreases with increase in both graphite and SiC content. This single and multilayer hybrid metal composites will have promising future in electrical contacts, thermal and electronic packaging, friction and brakes materials applications.*

**Key words:** Cu-Gr/SiC, HMMCs, multi-layer composites.

**Введение**

С момента открытия термоэлектрических материалов большие усилия прикладывались для улучшения их эффективности и разработки устройств для реальных приложений. В последние несколько десятилетий прогресс в этой области был ускорен благодаря растущему спросу на возобновляемые источники энергии. Открытие и проектирование соединений с низкой теплопроводностью, особенно соединений со специальным характером связи и устойчивой кристаллической структурой, представляет собой новое направление для расширения возможностей термоэлектрических материалов [1].

Медь широко применяется в термоэлектрическом приборостроении в качестве материала для коммутации термоэлементов. Поэтому исследование свойств материалов на основе  $Cu$ , в частности, медных нанокompозитов, имеет важное значение для термоэлектричества.

Медь активно используется как промышленный и функциональный металл для различных тепловых и электронных приложений, т.е. электронной упаковки, электрических контактов и электродов для контактной сварки. Диапазон устройств может быть значительно расширен от датчиков температуры до гибких термоэлектрических генераторов массового производства [2]. Это объясняется хорошей тепло- и электропроводностью меди, ее высокой пластичностью и отличным сопротивлением коррозии и окислению. Тем не менее, низкая механическая прочность и неприемлемая износостойкость меди ограничивают ее применения [3 – 7].

Подходящие тепловые и механические свойства могут быть достигнуты при смешивании соответствующих металлических и керамических фаз для получения композита. Включение упрочняющих частиц  $SiC$  в металлические композиты на основе  $Cu$  улучшают их механические и трибологические характеристики. Композиты с металлической матрицей  $Cu/SiC$ , благодаря своей отличной электро- и теплопроводности, улучшенным значениям твердости, противозносным и трением свойствам, стали предметом обширных исследований [8 – 10].

Характеристики металлических композитов на основе  $Cu$ , упрочненных мягкими частицами  $Gr$ , который является твердым смазочным материалом, обладающим хорошей проводимостью и противозадирными свойствами, приведены в [11 – 12].

Применение одного типа упрочнения в меди иногда приводит к ухудшению ее физических свойств. Поэтому проверяется концепция использования двух разных типов упрочнения в медной матрице. Для компенсации этих эффектов графит, как твердый смазочный материал, обладающий хорошей теплопроводностью, может быть диспергирован в медь наряду с  $SiC$  [13 – 15].

Однако информации о технологии и характеристике этих новых слоистых гибридных композитов на основе меди недостаточно. Данное исследование проведено с целью изучения комбинированного эффекта графита и  $SiC$  в матрице  $Cu$  при изготовлении многослойного гибридного композита с металлической матрицей  $Cu$ -графит- $SiC$  путем послойного уплотнения и спекания под давлением с переменной равной весовым долям 3%, 6%, 9% и 12%  $SiC$  и частиц  $Gr$ . Результаты этого экспериментального анализа и испытания термофизических свойств многослойных и однослойных композитов  $Cu/SiC/Gr$  станут ценными рекомендациями для производителей.

## Методика эксперимента

### Материалы и получение композитов

Для получения композитов в качестве сырья использовались технически чистые порошки меди, олова,  $SiC$ , сульфата бария, графита и стеарата цинка. В этом исследовании использовались частицы карбида кремния среднего размера 45 мкм и частицы графита среднего размера 90 мкм.

Для получения композита  $Cu$ -графит- $SiC$  порошки смешивали в миксере в течение 30 минут для равномерного распределения и однородного перемешивания порошков меди, графита и  $SiC$ . Смеси порошков были подвергнуты холодному прессованию с помощью одноосного прессующего штампа под давлением 500 МПа в течение 15 минут, а затем спеканию в трубчатой печи при 750 °С в течение 90 минут в атмосфере аргона при сохранении одинаковых параметров прессования и спекания. На данный момент мы получили композиты D и провели испытание образцов №2.

Эти образцы подвергались циклу отверждения, рекомендуемому производителем. Добавка олова вносилась с целью облегчения спекания жидкой фазы для улучшения уплотнения. На данном этапе мы обработали многослойные гибридные композиты (A, B и C) для испытания образцов №1. Образцы имеют одинаковую структуру, т.е. матрицу Cu, физические размеры, и отличаются только упрочнением SiC/Gr и укладкой слоистого композита в соответствии с таблицей.

Таблица

Содержание упрочняющих и матричных материалов

Композит	Слои	Карбид кремния (SiC), %	Графит (Gr), %	Матрица
A	3	9	9	1% Sn, 10%BaSO <sub>4</sub> и 83%Cu
B	3	6	6	1% Sn, 10%BaSO <sub>4</sub> и 77%Cu
C	3	3	3	1% Sn, 10%BaSO <sub>4</sub> и 81%Cu
D	1	9	9	1% Sn, 10%BaSO <sub>4</sub> и 81%Cu

### Методики испытания

#### Испытание образцов №1: Одно- и многослойные гибридные композиты с металлической матрицей Cu

Были отлиты композиты требуемого диаметра и длины. Частицы карбида кремния имели форму твердого кристалла, а частицы карбида – форму хлопьев.

Разные образцы были прецизионно взвешены на электронных весах с точностью до 0.1 мг. В целом, экспериментальные данные, полученные на трех образцах, вырезанных из одного композита, были приняты как среднее значение.

Характеристики износа и трения композитов были изучены с помощью управляемого компьютером дискового лабораторного инерционного тормозного динамометра на воздухе при температуре окружающей среды (25 – 30 °C).

Испытания на сжатие проводились на универсальной испытательной установке со скоростью деформации 0.001 м/с. Размеры образца для сжатия и теплового расширения составляли 5 мм × 5 мм × 20 мм. Коэффициент теплового расширения (КТР) образцов измерялся в температурном диапазоне от 20 °C до 200 °C, со скоростью нагрева 5 °C/мин, с помощью платинового горизонтального дилатометра Linesis 75.

#### Испытание образцов № 2: Один слой, 10%BaSO<sub>4</sub> и 78% – 87%Cu, переменное содержание SiC/Gr 3%, 6%, 9% и 12%

Измерения плотности проводились для определения уровней пористости образцов. Плотность образцов измерялась по стандарту ISO 2738. Измеренная плотность сравнивалась с величиной, полученной с использованием правила аддитивности, с тем, чтобы определить объемную долю пористости.

Для измерения электрического сопротивления образца применялся четырехзондовый измерительный прибор, где два зонда соединялись с амперметром, а два других – с вольтметром.

## Результаты и дискуссия

### Плотность и пористость

На рис. 1 показано изменение относительной плотности для однослойных гибридных композитов Cu-графит-SiC, содержащих 3%, 6%, 9% и 12% SiC и 3%, 6%, 9% и 12% графита. Процент пористости в композитах возрастает с ростом содержания упрочнений, как показано

далее на рис. 4. Графит – это твердый смазочный материал, который облегчает движение и перегруппировку матрицы и упрочняющих частиц, что приводит к повышению плотности. Замечено также, что величина относительной плотности возрастает с увеличением содержания SiC. Плотность композита зависит от объемной доли мягкой и твердой фаз. При низкой доле SiC твердая частица хорошо диспергирует, а мягкие частицы графита и Cu могут деформироваться и заполнять пробелы, и, в зависимости от содержания графита, достигается величина плотности около 85%. Объемная доля пористости, ее размер и распределение в композите с литой металлической матрицей играют важную роль при контроле механических свойств материала. Уровни пористости должны быть сведены к минимуму.

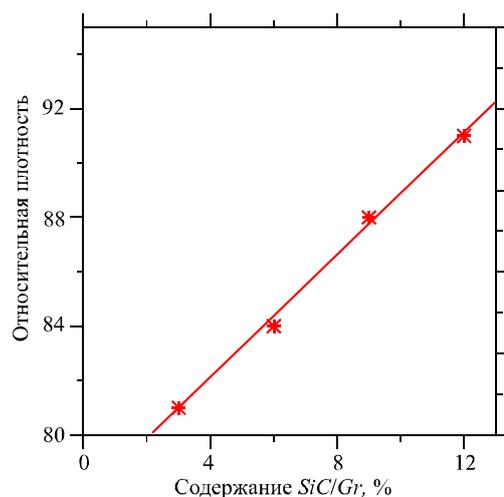


Рис. 1. Изменение плотности с увеличением содержания SiC/Gr.

### Сопротивление износу

Как показано на рис. 2, с увеличением содержания SiC/Gr и слоев скорость износа гибридных композитов с металлической матрицей Cu/SiC/Gr уменьшается. Установлено, что количество графита, выпущенного на поверхность износа, образует трибопленку на контактных поверхностях. Это снижает скорость износа. Наличие графитового трибослоя (или механически смешанного слоя) также повышает устойчивость от заклинивания и позволяет работать при тонком слое смазки без истирания. Увеличение выступа частиц SiC приводит к образованию более устойчивой смазочной пленки на трибоповерхности гибридных композитов.

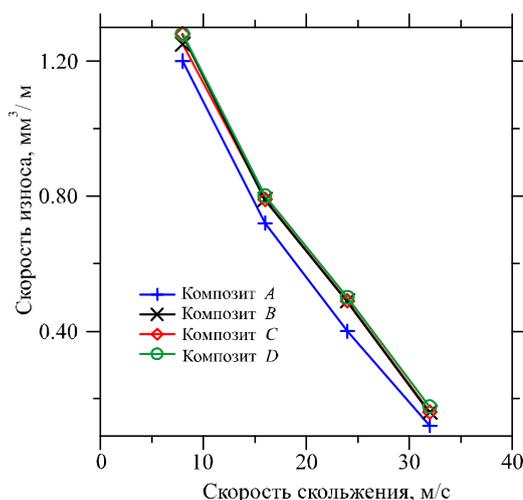


Рис. 2. Влияние добавки SiC/Gr на скорость износа матрицы исследованных композитов.

### Эффективность торможения

Как показано на рис. 3, наличие графита на поверхности износа образует трибопленку на контактных поверхностях. Это уменьшает общий коэффициент трения. Кроме того, композиты *D* демонстрируют очень высокий коэффициент трения (0.565 при 4 м/с). Это высокое трение не приводит к улучшению эффективности торможения или сопротивления износу. Образование окалины, участие графита в скольжении, ослабление адгезивных и абразивных фрикционных контактов уменьшают силы трения на границе раздела с увеличением скоростей скольжения.

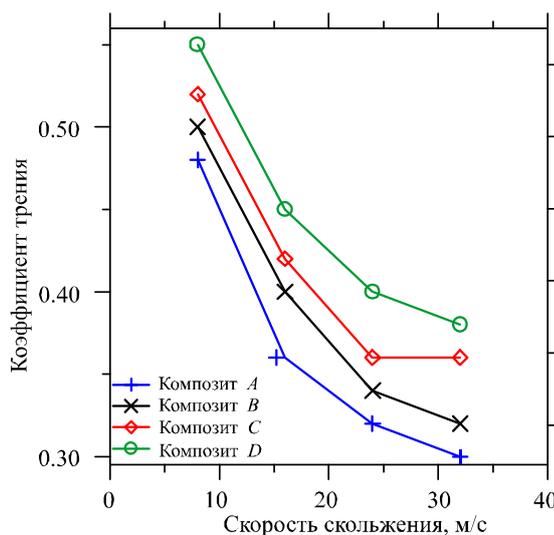


Рис. 3. Влияние скорости скольжения на средний коэффициент трения композитов.

### Тепловое расширение и пористость

Из рис. 4 видно, что КТР слоистого композита ниже, чем у однослойного. По мере увеличения объемной доли *SiC/Gr*, КТР проявляет тенденцию к линейному снижению с ростом пористости. Упаковочные материалы в микроэлектронике должны иметь высокую теплопроводность для рассеивания тепла и низкий КТР для снижения несоответствия теплового расширения между устройствами.

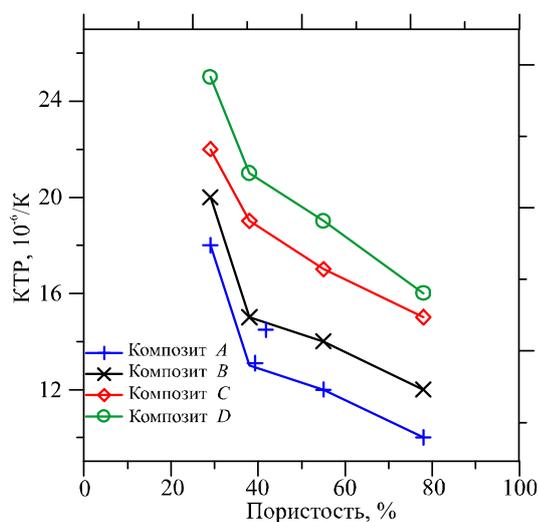


Рис. 4. Колебания КТР для различных композиционных материалов с порошковым наполнителем (температура: 100 °С). КТР (10<sup>-6</sup>/К) % пористости.

Из графика на рис. 4 следует, что КТР гибридных композитов *Cu-SiC-Gr* снижается с увеличением % упрочнения. Введение большого количества графита в матрицу сплава *Al-Si* оказывает благоприятное влияние на стабильность размеров. Результаты показали, что частицы графита поглощают тепловое расширение благодаря своей слоистой структуре.

### Прочность на сжатие

На рис. 5 приведена кривая прочность на сжатие – деформация для композитов *Cu*-графит-*SiC*. Следует отметить, что прочность на сжатие слоистого композита больше, чем у однослойного. Это объясняется более высокой плотностью и твердостью композитов. Замечено, что предел прочности при изгибе трехслойных композитов на основе *Cu* намного выше, чем у однослойного, в связи с остаточными сжимающими напряжениями во внешнем слое.

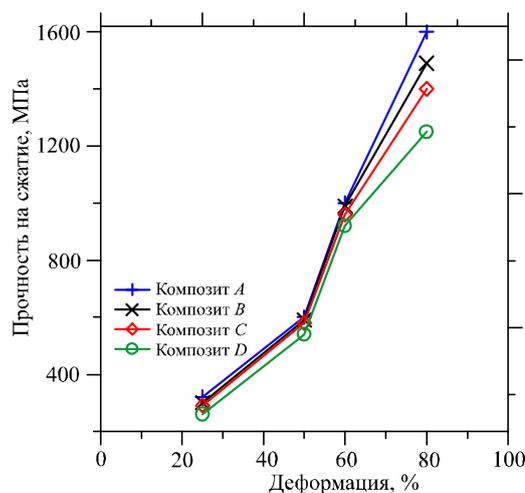


Рис. 5. Влияние объемной доли упрочнений на прочность на сжатие.

### Электропроводность

Из рис. 6 видно, что электропроводность слоистых гибридных композитов *Cu*, содержащих 3%, 6%, 9% и 12% *SiC* и 3%, 6%, 9% и 12% графита, проявляет тенденцию к линейному снижению с ростом *SiC/Gr*. *SiC* на основе керамики создает барьер для движения электронов меди, обеспечивая электропроводность. Частицы *SiC*, добавленные к чистой меди, удваивают электрическое сопротивление за счет искажения структуры, поэтому электропроводность композитов снижается с увеличением объемной доли *SiC* [13].

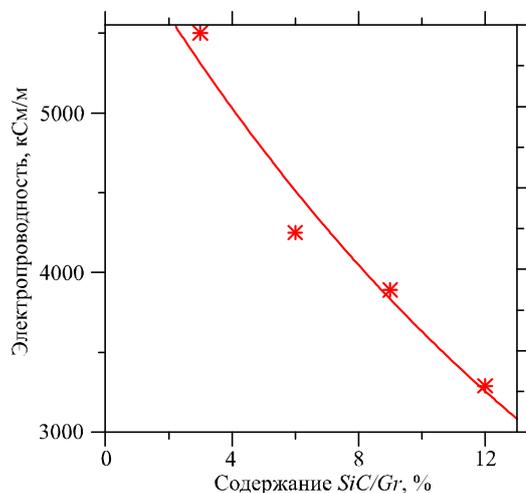


Рис. 6. Влияние объемной доли упрочнений на электропроводность.

Композиты с металлической матрицей на основе *Cu* с очень низким процентом *SiC/Gr* (0 – 4%) настоятельно рекомендуются для применения во многих электрических контактах, тепловых и электронных блоках, так как обладают высокой электропроводностью.

## Выводы

Проведенные испытания композитов позволили сделать следующие выводы:

1. Гибридные композиты *Cu* были успешно получены путем послойного уплотнения и спекания под давлением с переменной дисперсией частиц *SiC* и *Gr*. Нами изучены термофизические свойства гибридных композитов *Cu/SiC/Gr* в трехслойной и однослойной конфигурациях, содержащих 3%, 6%, 9% и 12% *SiC* и 3%, 6%, 9% и 12% графита.
2. Технология, применяемая в данной работе, позволит реализовать электрические контакты, фрикционные материалы, тормоза, тепловые и электронные блоки из гибридных композитов с металлической матрицей *Cu-Gr/SiC*.

## Литература

1. Baoli Du, Ruizhi Zhang, Kan Chen, Amit Mahajan, and Mike J. Reece, The Impact of Lone-Pair Electrons on the Lattice Thermal Conductivity of the Thermoelectric Compound *CuSbS<sub>2</sub>*, *J. Mater. Chem. A* **5**(7), 3249 – 3259 (2017).
2. Virgil Andrei, Kevin Bethke, and Klaus Rademann, Adjusting the Thermoelectric Properties of Copper(I) Oxide-Graphite-Polymer Pastes and the Applications of Such Flexible Composites, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 10700 – 10707 (2016).
3. M. Lekka, D. Koumoulis, N. Kouloumbi, and P.L. Bonora, Mechanical and Anticorrosive Properties of Copper Matrix Micro- and Nano-Composite Coatings, *Electrochim Acta* **54**, 2540 – 2546 (2009).
4. Y. Zhan, G. Zhang, The Effect of Interfacial Modifying on the Mechanical and Wear Properties of *SiCp/Cu* Composites, *Mater Lett* **57**, 4583 – 4591 (2003).
5. K.M. Shu, G.C. Tu, The Microstructure and the Thermal Expansion Characteristics of *Cu/SiCp* Composites, *Mater Sci Eng A* **349**, 236 – 247 (2003).
6. J. Zhu, L. Liu, H. Zhao, B. Shen, and W. Hu, Microstructure and Performance of Electroformed *Cu/nano-SiC* Composite, *Mater Des* **28**, 1958 – 1962 (2007).
7. Th. Schubert, B. Trindade, T. Weibgarber, and B. Kieback, Interfacial Design of *Cu*-based Composites Prepared by Powder Metallurgy for Heat Sink Applications, *Mater.Sci.Eng.A* **475**, 39 – 44 (2008).
8. Mohsen Barmouz, Mohammad Kazem Besharati Givi, and Javad Seyfi, On the Role of Processing Parameters in Producing *Cu/SiC* Metal Matrix Composites via Friction Stir Processing: Investigating Microstructure, Microhardness, Wear and Tensile Behavior, *Materials Characterization* **62**, 108 – 117 (2011).
9. K.M. Shu, G.C. Tu, Fabrication and Characterization of *Cu-SiCp* Composites for Electrical Discharge Machining Applications, *Mater Manuf Processes* **16**(4), 483 – 502 (2001).
10. S.G. Sapate, A. Uttarwar, R.C. Rathod, and R.K. Paretkar, Analyzing Dry Sliding Wear Behaviour of Copper Matrix Composites Reinforced with Pre-Coated *SiCp* Particles, *Mater Des* **30**, 376 – 386 (2009).

11. Y. Zhan, G. Zhang, The Role of Graphite Particles in the High-Temperature Wear of Copper Hybrid Composites against Steel, *Mater.Des.* 27, 79 – 84 (2006).
12. Y. Qin, Y. Wu, D. Wang, P. Li, X. Huang, and Y. Zheng, Influence of SiC Particle Size on the Wear Properties of SiC/Cu Composites, *Adv.Mater.Res.* 311 – 313, 635 – 639 (2011).
13. T. Ram Prabhu, V.K. Varma, and Srikanth Vedantam, Tribological and Mechanical Behavior of Multilayer Cu/SiC/Gr Hybrid Composites for Brake Friction Material Applications, *Wear* 317, 201 – 212 (2014).
14. C.S. Ramesh, R.N. Ahmed, M.A. Mujeebub, and M.Z. Abdullah, Development and Performance Analysis of Novel Cast Copper-SiC-Gr Hybrid Composites, *Mater. Des.* 30, 1957 – 1965 (2009).
15. A. Meher & D. Chaira, Effect of Graphite and SiC Addition into Cu and SiC Particle Size Effect on Fabrication of Cu-Graphite-SiC MMC by Powder Metallurgy, Published online by Trans Indian Inst Met (2017).

Поступила в редакцию 21.10.2016