论 文

NiO界面涂层对钛酸锶钡增强铜基复合材料中陶瓷相变及性能的影响研究

盛捷^{1,2†}, 陈万小男^{3†}, 王黎东³, 王秒³, 杨子玥³, 时振东³, 张幸红², 费维栋^{3*},
韩杰才^{1,2*}

1. 哈尔滨工业大学空间环境与物质科学研究院, 哈尔滨 150001;

2. 哈尔滨工业大学复合材料与结构研究所, 特种环境复合材料技术重点实验室, 哈尔滨 150001;

3. 哈尔滨工业大学材料科学与工程学院, 哈尔滨 150001

†同等贡献

* E-mail: wdfei@hit.edu.cn; hanjc@hit.edu.cn

收稿日期: 2020-04-09; 接受日期: 2020-07-20; 网络版发表日期: 2020-11-05

国家自然科学基金(批准号: 51801043)、中国博士后科学基金(编号: 2019M650065)、国防科工局重点实验室基金(编号: JCKYS2019603C017)资助项目

摘要 利用钛酸锶钡相变负膨胀的特性可以有效降低铜基复合材料的热膨胀系数, 如何改善复合材料界面结合仍然是研究的关键问题. 本文通过向钛酸锶钡/铜复合材料中引入NiO界面涂层的方法来改善复合材料的界面结合. 由于NiO界面涂层的引入有效降低了复合材料的残余应力, 复合材料中钛酸锶钡颗粒相变的温度区间被拓宽, 因此复合材料的热膨胀系数有效降低, 在室温~250°C范围内的平均热膨胀系数由 $12.99 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ 降低至 $11.71 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$. 此外, 改善界面结合也有效提高了复合材料的力学性能, 其中复合材料屈服强度和压缩断裂强度分别提升了72.8%和41.3%. 本研究表明, NiO界面涂层可以有效改善钛酸锶钡/铜复合材料的界面结合并提高其性能, 具有广阔的应用前景.

关键词 铜基复合材料, BaTiO₃, NiO界面涂层, 低热膨胀

1 引言

电子工业的飞速发展和电子器件的不断小型化, 对热管理材料提出了更高的要求^[1,2]. 散热片和散热材料都要求具有低膨胀性和高导热性, 以有效地将热量从发热部件中转移出去. 控制这些材料的热膨胀系数(CTE)是降低电子元件与相应热管理材料之间热错配

应力的关键, 因为热错配应力会导致裂纹扩展, 进而影响材料的可靠性和寿命. 此外, 优异的力学性能是热管理材料实际应用的另一重要技术指标, 有利于热管理材料的承载能力和稳定性.

铜是热管理领域最常用的材料之一, 它具有较高的导热系数, 但高达 $18 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ 的热膨胀系数限制了其直接应用. 金属基复合材料综合了金属基高导热和

引用格式: 盛捷, 陈万小男, 王黎东, 等. NiO界面涂层对钛酸锶钡增强铜基复合材料中陶瓷相变及性能的影响研究. 中国科学: 技术科学, 2020, 50: 1588–1596
Sheng J, Chen W X N, Wang L D, et al. Effect of NiO interface coating on thermal and mechanical properties in Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO₃/Cu matrix composites (in Chinese). Sci Sin Tech, 2020, 50: 1588–1596, doi: [10.1360/SST-2020-0154](https://doi.org/10.1360/SST-2020-0154)

陶瓷增强材料低膨胀的优点. 研究表明, 通过引入低膨胀陶瓷增强体, 可以有效降低复合材料的热膨胀系数^[3~6]. 为了更有效地制备低膨胀的金属基复合材料, 采用负膨胀(NTE)材料作为增强体. 钨酸锆(ZrW_2O_8)是一种很有前景的非晶态陶瓷, 在Cu和Al基复合材料中有着广泛的应用, 但其在加热过程中的分解以及从 α 到 β 和 γ 的结构转变, 限制了其进一步应用^[7~9]. β -锂霞石(β -eucryptite)也被用于降低Cu和Al基复合材料的热膨胀系数, 但由于锂霞石的低弹性模量, 材料的机械性能变差^[10~12]. 由于高导热性和低膨胀性, 金刚石似乎是热管理复合材料中最有前途的增强材料^[3,13,14]. 然而, 金刚石在700°C以上的表面碳化, 以及超高硬度而难以加工的特点, 使其应用难度很高. 因此, 寻找一种新型高效的低膨胀陶瓷增强材料作为热管理材料.

根据我们最近的研究, 具有钙钛矿晶体结构的($\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x$) TiO_3 (记为BST)被成功应用于Cu基(BST/Cu)复合材料中, 以控制复合材料的热膨胀^[15~17]. 升温至居里温度时, 复合材料中由四方相向立方相结构转变过程中BST发生铁电顺电相转变呈现出较大的负膨胀系数(约 $-50 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$), 对降低复合材料的热膨胀系数有良好的效果. 利用相变过程中的负膨胀现象为降低复合材料的热膨胀系数提供了新途径.

基体与增强体之间的界面对金属基复合材料的性能起着至关重要的作用. 金属基体和陶瓷增强体之间的良好界面能有效地传递负载和热量^[18~20]. 因此, 良好的界面状态可以提高复合材料的力学性能和热性能. 界面涂层是通过物理或化学键合来改善界面的一种常用方法, 有利于提高复合材料的性能^[21,22]. 然而, 对于BST/Cu低膨胀复合材料的研究并不多见.

本文采用放电等离子体烧结(SPS)制备了BST陶瓷颗粒增强铜基复合材料, 在此过程中, 在BST颗粒上涂覆NiO涂层作为复合材料的界面过渡层. 通过NiO涂层BST/Cu复合材料与无涂层BST/Cu复合材料的对比, 系统地研究了NiO涂层作为界面过渡层对复合材料微组织结构、铁电顺电相变过程、热膨胀系数和力学性能的影响.

2 实验

本文采用固相合成法制备BST陶瓷颗粒, 原料使用 BaCO_3 、 SrCO_3 和 TiO_2 , 经循环球磨分散和高温烧结

工艺处理, 最终获得单一相结构的BST陶瓷颗粒, BST陶瓷颗粒尺寸的分布范围在几百纳米到几微米之间.

采用化学涂覆法在BST颗粒表面制备了NiO涂层(图1). 首先, 按照化学计量比将 $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 加入到乙醇溶液, 用磁力搅拌装置分散、溶解, 然后加入相应的BST颗粒. 将温度加热至80°C, 乙醇在该条件下逐渐挥发, 在表面能的驱动下, $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2$ 从溶液中析出并逐渐在BST颗粒表面结晶, 形成 $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 涂层包覆的BST颗粒.

$\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 涂层包覆的BST颗粒需经过一系列热处理使 $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2$ 经过一系列化学过程形成NiO. $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 在升温至450°C的过程中逐渐脱水, 依次变为 $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 和 $\text{Ni}(\text{NO}_3)(\text{OH})_{1.5}\text{O}_{0.25} \cdot \text{H}_2\text{O}$ ^[23]. 因此在500°C煅烧, 可以获得 $\text{Ni}(\text{NO}_3)(\text{OH})_{1.5}\text{O}_{0.25} \cdot \text{H}_2\text{O}$ 包覆的BST陶瓷颗粒. 进一步在900°C高温煅烧陶瓷颗粒, $\text{Ni}(\text{NO}_3)(\text{OH})_{1.5}\text{O}_{0.25} \cdot \text{H}_2\text{O}$ 最终会分解生成NiO.

根据 $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 升温过程中的变化过程, 本文将获得的预处理颗粒在120°C下干燥, 然后在500°C下处理12 h, 通过这种方式, 获得表面涂覆 $\text{Ni}(\text{OH})_2$ 的BST颗粒. 在900°C下进一步煅烧颗粒, $\text{Ni}(\text{OH})_2$ 转化为NiO. 最后, 获得了NiO包覆的BST颗粒.

采用球磨法, 以乙醇为缓冲液, 以300 r/min的速率连续球磨12 h, 使BST颗粒与铜粉(平均粒径500 nm)均匀混合. 烘干后, 在950°C和50 MPa压力下, 采用真空热压烧结法制备复合材料, 其中BST陶瓷颗粒(含NiO界面涂层)占复合材料体积分数的40%. 将BST增强铜基复合材料标记为BST/Cu复合材料, NiO包覆BST颗粒增强铜基复合材料标记为NiO-BST/Cu复合材料, NiO涂层占BST陶瓷体积分数10%对应复合材料记为(10NiO-BST)/Cu复合材料.

在X'Pert型X射线衍射仪(XRD)上进行Cu $K\alpha$ 射线衍射, 确定了复合材料的相组成. 采用20 kV加速电压

图1 (网络版彩图)BST颗粒表面NiO涂层制备方法
Figure 1 (Color online) Preparation method for NiO coating on the surface of BST particles.

下的扫描电子显微镜(SEM, Helios Nanolab600i)和200 kV加速电压下的扫描透射电子显微镜(STEM, Talos F200X)对复合材料的形貌和结构进行了表征. 用选区衍射(SADP)测定了复合材料的相组成. 用热膨胀仪(Netzsch DIL402C)测定了复合材料在室温至250°C的热膨胀系数, 升温速率为2°C/min, 用电子万能试验机(Instron 5569R)测定了复合材料的力学性能, 压缩速率为0.5 mm/min, 并根据位移计算应变.

3 结果与讨论

图2(a)是复合材料的SEM典型背散射形貌, BST颗粒均匀分布在Cu基体中, 粒径从几百纳米到几微米不等.

图2(b)对比了BST/Cu和(10NiO-BST)/Cu复合材料的XRD图谱. 结果表明, (10NiO-BST)/Cu复合材料中出现了与NiO相对应的峰, 说明NiO涂层已成功引入到复合材料中. 值得注意的是, 当引入NiO涂层时, Cu(111)的峰值位置向右移动, 如图2(b)中的插图所示, 这表明引入NiO涂层后, Cu基体中的残余拉应力得到了松弛, Cu的晶格常数减小. 复合材料中基体与增强体颗粒的界面状态对残余应力和结合强度有显著影响, 进而影响复合材料的综合性能, 这也是将NiO界面涂层引入BST/Cu复合材料的目. 为了确认复合材料中BST颗粒与铜基体之间存在NiO涂层, 通过TEM观察界面周围的形貌(图3). 图3(a)显示了BST/Cu复合材料中Cu基体与BST颗粒间界面的典型形貌, 由图可知界面清洁、光滑, 没有明显界面产物. 图3(b)显示了

图2 (网络版彩图) (a) BST/Cu复合材料的SEM背散射图; (b) BST/Cu和(10NiO-BST)/Cu复合材料的XRD图

Figure 2 (Color online) (a) Back scattering patterns of BST/Cu composites; (b) XRD patterns of BST/Cu and (10NiO-BST)/Cu composites.

图3 TEM分析. (a) BST/Cu复合材料; (b) (10NiO-BST)/Cu复合材料; (c) 界面涂层在(10NiO-BST)/Cu复合材料中的SADP图

Figure 3 TEM results. (a) BST/Cu composite; (b) (10NiO-BST)/Cu composite; (c) the SADP pattern of interface coating on (10NiO-BST)/Cu composite.

NiO-BST/Cu复合材料中的界面, 铜基体与BST颗粒间存在明显的球形界面产物. 为了确定球状界面产物的相组成, 进行了选区衍射分析, 如图3(c)的插图所示, SADP结果表明界面产物为NiO. 结合XRD结果, 验证

了NiO界面涂层在BST/Cu复合材料中的引入是成功的.

BST颗粒在复合材料相变过程中的负热膨胀效应无疑会降低复合材料的热膨胀系数, 这也是BST引入

图 4 (网络版彩图) (a) BST/Cu复合材料的原位XRD图; (b) NiO-BST/Cu复合材料的原位XRD图; (c) BST/Cu复合材料的原位XRD峰强变化; (d) NiO-BST/Cu复合材料的原位XRD峰强变化; (e) BST/Cu复合材料的Cu晶格常数; (f) NiO-BST/Cu复合材料的Cu晶格常数

Figure 4 (Color online) (a) *In situ* XRD patterns of BST/Cu composite; (b) *in situ* XRD patterns of NiO-BST/Cu composite; (c) peak intensity variation of *in situ* XRD patterns of BST/Cu composite; (d) peak intensity variation of *in situ* XRD patterns of NiO-BST/Cu composite; (e) lattice constant of Cu in BST/Cu composite; (f) lattice constant of Cu in NiO-BST/Cu composite.

铜基体的目的. 原位X射线衍射提供复合材料中BST颗粒的相变信息(图4). 图4(a)和(b)对比了BST/Cu复合材料和NiO-BST/Cu复合材料的原位XRD结果. 对于BST颗粒, 居里温度(63°C)是一个临界温度点, 当低于居里温度时, BST粒子将呈现四方相(T相), 其中 c 轴的长度超过 a 轴和 b 轴的长度, 这将导致{200}两个峰的存在. 当高于居里温度时, BST颗粒将呈现立方相(C相), 其中 c 轴的长度等于 a 轴和 b 轴的长度, 导致XRD图中出现{200}的单峰. 图4中不同温度下复合材料中BST的衍射峰{200}, 当T相和C相BST粒子共存时可分为三个峰, 其中两个分别对应于T相BST的(002)_T和(200)_T峰, 中心一个对应于C相BST的(200)_C峰.

从X射线衍射图和拟合结果来看, 值得注意的是观察到室温下复合材料中BST颗粒中T相和C相共存, 这意味着复合材料中的BST颗粒不会随温度的升高而均匀地转变, 甚至复合材料中某些BST颗粒的居里温度低于室温. 以往对BST颗粒增强铜基复合材料的研究也发现了类似的现象^[17,18], 这可能是由于复合材料中应力分布的不均匀影响了颗粒的居里温度(T_C). BST/Cu复合材料和NiO-BST/Cu复合材料中, BST颗粒的(002)_T和(200)_T峰强度随温度的升高而逐渐减小, 而(200)_C峰强度则逐渐增大. 在某一临界温度点后, 随着温度的进一步升高, 对应于T相峰的双边峰逐渐消失, 中心峰逐渐占主导地位, 说明相变正在进行. 值得一提的是, BST颗粒在复合材料中的相变完成温度不同, BST/Cu复合材料中BST的相变约在100°C, 而NiO-BST/Cu复合材料中BST约在125°C时完成相变过程.

图4(c)~(e)分别总结和给出了相变的一些详细信息. 根据拟合结果, 计算了复合材料中T相强度的BST颗粒与所有BST颗粒的强度比值, 并分别呈现在图4(c)和(d)中. 结果表明, NiO-BST/Cu复合材料中T相BST颗粒的含量略高于BST/Cu复合材料. 在压应力作用下, 复合材料中BST颗粒的 T_C 甚至低于室温. 此外, NiO涂层的引入可以有效地改善界面结合, 进一步缓解压应力. 因此, 在NiO-BST/Cu复合材料中可以获得较高比例的T相BST颗粒. 随着温度的升高, 两种复合材料中T相BST颗粒的含量逐渐降低, 表明BST颗粒的相变正在进行中, 相变结束时下降到零. 值得注意的是, NiO-BST/Cu复合材料中BST颗粒的相变比BST/Cu复合材料中BST颗粒的相变持续温度要长, 达到约150°C, 明显高于BST/Cu复合材料的125°C, 这可能是由于NiO-

BST/Cu复合材料中存在较多的T相BST颗粒. 图4(e)和(f)比较了在复合材料中加热时铜基体晶格常数的变化. 在室温下, Cu基复合材料的晶格常数均高于纯Cu (3.615 Å), 这是由复合材料的拉伸应力引起的. 值得注意的是, NiO-BST/Cu复合材料中Cu的晶格常数小于BST/Cu复合材料中Cu的晶格常数, 更接近于纯Cu的晶格常数, 从另一方面说明NiO界面涂层的应力松弛效应, 该结果与图2中复合材料的XRD结果一致. 随着温度的升高, Cu晶格常数随温度的变化曲线逐渐上升, 但两者之间存在差异. 在图4(e)和(f)中, 随着加热温度的提高铜的晶格常数曲线几乎线性地提高, 而橙色标记的区域反映了BST颗粒相变对铜基体晶格常数的影响作用. 结果表明, NiO-BST/Cu复合材料中铜基体晶格膨胀受影响区域明显大于BST/Cu复合材料, 这之前NiO-BST/Cu复合材料中T相BST颗粒较多的结果相一致.

图5(a)和(b)显示了复合材料在50~250°C温度范围内的工程CTE和平均CTE. 与BST/Cu复合材料相比, NiO-BST/Cu复合材料的CTE曲线整体较低. 在300°C下退火4 h, 这导致CTE曲线进一步下降. 值得注意的是, NiO涂层的加入可以有效降低复合材料的CTE值, 这可以归因于界面结合的改善, 从而使BST颗粒的负CTE效应更有效地传递到Cu基体上. 退火工艺可以改善NiO-BST/Cu复合材料的应力分布, 从而进一步降低复合材料的热膨胀系数.

通常利用理论模型分析和预测两相复合材料的热膨胀系数, 如混合法则和Turner模型. 前者只考虑了复合材料中两组分各自的性质, 而后者还考虑了两相间的法向应力耦合^[24,25]. 图5(a)总结了复合材料CTE和模型之间的比较和分析. 首先, 由于界面结合不良和残余应力的共同作用, BST/Cu复合材料的热膨胀系数远高于Turner模型的计算结果. 因此, 引入NiO界面涂层和退火工艺有利于降低复合材料的热膨胀系数.

为了详细分析NiO界面涂层的影响, 根据温度将CTE图形分为两部分. 第一部分从室温到150°C左右, 复合材料的热膨胀系数明显高于Turner模型的计算结果. 以纯铜和纯BST的CTE为基础数据. 由于无应力BST颗粒的相变负膨胀发生在较窄的温度范围内, 在70°C左右的计算曲线上很容易找到一个临界点. 然而, 在我们最近的研究中发现BST/Cu复合材料中的非均匀应力使BST颗粒的相变温度范围变宽^[15,24,26]. 因此,

由于相变对复合材料热膨胀系数的降低作用分布在相应的温度范围内, 复合材料的热膨胀系数高于Turner模型的结果. 根据Turner模型的结果, 计算出的BST颗粒在100~150°C温度范围内相变后, 其曲线迅速爬升, 相应地, Turner模型与复合材料实际CTE曲线之间的差距迅速缩小. 在第二部分, 从150~250°C, CTE曲线趋于稳定增长, 实际CTE曲线更接近Turner模型的结果. 引入NiO涂层可以通过增强界面的机械结合来改善界面结合, 从而使NiO-BST/Cu复合材料的CTE曲线趋于符合Turner定律的结果, 正如Turner定律考虑了相间的法向应力耦合一样. 进一步的退火工艺不仅降低了应力, 而且进一步改善了界面结合. 结果表明, 退火后NiO-BST/Cu复合材料的CTE曲线进一步下降, 并趋于接近Turner定律.

通过压缩试验表征了BST/Cu复合材料和NiO-

BST/Cu复合材料的力学性能, 得到了工程应力应变曲线和相应的力学性能(图6). 随着界面结合强度的增强, NiO-BST/Cu复合材料的屈服强度和压缩断裂强度分别提高到了578.9和755.8 MPa, 而BST/Cu复合材料的屈服强度和压缩断裂强度分别为335.1和534.8 MPa. 此外, 复合材料的断裂延伸率变化不大. 结果表明, NiO涂层的引入可以提高BST/Cu复合材料的力学性能. 对复合材料进行了室温至300°C的热循环处理, 结果如图7所示. 首先, 热循环多次后热膨胀系数趋于稳定.

此外, 热循环三次后复合材料的热膨胀系数在测试的温度区间有所降低. 这是因为热循环处理降低了复合材料中存在的残余应力, 促进了BST颗粒的相变. 另外, 在(10NiO-SBT)/Cu复合材料的热膨胀曲线中, 可以发现热循环处理后, 热膨胀曲线出现了一定程度的波动, 应该是应力释放后更多的相变释放导致. 上

图 5 (网络版彩图) (a) 复合材料的CTE和理论模型预测值; (b) 复合材料的平均CTE

Figure 5 (Color online) (a) CTEs and theoretical model predictions of the composites; (b) mean CTEs of the composites.

图 6 (网络版彩图) (a) 复合材料的应力应变曲线; (b) 复合材料的屈服强度和压缩断裂强度

Figure 6 (Color online) (a) Stress-strain curves of the composites; (b) yield strength and compressive strength of the composites.

图 7 (网络版彩图)复合材料热循环后热膨胀系数
Figure 7 (Color online) CTEs of the composite after thermal cycles.

述结果均侧面表明复合材料中界面结合的稳定性。

4 结论

本研究成功在BST颗粒增强铜基复合材料中设计并引入了NiO界面涂层,改善了界面结合,分析了其对

BST颗粒相变过程的影响,并对降低CTE和提高力学性能进行了讨论。

(1) 采用溶胶-凝胶法在BST颗粒表面涂覆NiO界面涂层,并将其引入复合材料中,提高了铜基体与BST颗粒的结合强度。

(2) 引入NiO界面结合提高了T相BST颗粒在复合材料中的比例,拓宽了相变温度范围,有利于降低BST/Cu复合材料的热膨胀系数,并降低了室温~250°C范围内的平均热膨胀系数。

(3) NiO界面涂层的引入和进一步的退火处理可以有效地降低复合材料的热膨胀系数。此外, NiO界面涂层还可以提高复合材料的力学性能,屈服强度和压缩断裂强度分别达到578.9和755.8 MPa。力学性能的提升和热循环后热膨胀系数的稳定说明复合材料中界面结合良好。

本研究验证了金属基体与陶瓷颗粒之间的界面涂层能够有效地改善复合材料的界面结合,进一步提高材料的热膨胀性能和力学性能。结果表明, NiO-BST/Cu复合材料具有广阔的应用前景。

参考文献

- Qu X, Zhang L, Wu M, et al. Review of metal matrix composites with high thermal conductivity for thermal management applications. *Prog Nat Sci-Mater Int*, 2011, 21: 189–197
- Cha S I, Kim K T, Arshad S N, et al. Extraordinary strengthening effect of carbon nanotubes in metal-matrix nanocomposites processed by molecular-level mixing. *Adv Mater*, 2005, 17: 1377–1381
- Tan Z, Li Z, Fan G, et al. Fabrication of diamond/aluminum composites by vacuum hot pressing: Process optimization and thermal properties. *Compos Part B-Eng*, 2013, 47: 173–180
- Della Gaspera E, Tucker R, Star K, et al. Copper-based conductive composites with tailored thermal expansion. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2013, 5: 10966–10974
- Boostani A F, Mousavian R T, Tahamtan S, et al. Graphene sheets encapsulating SiC nanoparticles: A roadmap towards enhancing tensile ductility of metal matrix composites. *Mater Sci Eng-A*, 2015, 648: 92–103
- Shan X, Huang R, Han Y, et al. La(Fe, Si, Co)₁₃/Cu conductive composites with tailoring thermal expansion. *J Alloys Compd*, 2016, 662: 505–509
- Peng Z, Sun Y Z, Peng L M. Hydrothermal synthesis of ZrW₂O₈ nanorods and its application in ZrW₂O₈/Cu composites with controllable thermal expansion coefficients. *Mater Des (1980-2015)*, 2014, 54: 989–994
- Wu G, Zhou C, Zhang Q, et al. Decomposition of ZrW₂O₈ in Al matrix and the influence of heat treatment on ZrW₂O₈/Al-Si thermal expansion. *Scripta Mater*, 2015, 96: 29–32
- Romao C P, White M A. Negative stiffness in ZrW₂O₈ inclusions as a result of thermal stress. *Appl Phys Lett*, 2016, 109: 031902
- Xue Z W, Wang L D, Liu Z, et al. Effect of interfacial state on thermal expansion behaviors of β-LiAlSiO₄ particulate-reinforced Cu composites. *Scripta Mater*, 2010, 62: 867–870
- Xue Z W, Liu Z, Wang L D, et al. Thermal properties of new copper matrix composite reinforced by β-eucryptite particulates. *Mater Sci Tech*, 2010, 26: 1521–1524

- 12 Wang L, Xue Z, Liu Z, et al. Thermal expansion behavior of a β -LiAlSiO₄/Cu composite. *Rare Met*, 2009, 28: 82–85
- 13 Tan Z, Li Z, Fan G, et al. Diamond/aluminum composites processed by vacuum hot pressing: Microstructure characteristics and thermal properties. *Diamond Related Mater*, 2013, 31: 1–5
- 14 Chu K, Jia C, Liang X, et al. Effect of powder mixing process on the microstructure and thermal conductivity of Al/diamond composites fabricated by spark plasma sintering. *Rare Met*, 2010, 29: 86–91
- 15 Sheng J, Wang L, Li S, et al. Phase-transformation-induced extra thermal expansion behavior of (Sr_xBa_{1-x})TiO₃/Cu composite. *Sci Rep*, 2016, 6: 27118
- 16 Sheng J, Wang L D, Cao W P, et al. Effect of deformation on thermal expansion behavior of Sr_{0.2}Ba_{0.8}TiO₃/Cu composite. *J Alloys Compd*, 2017, 729: 735–741
- 17 Sheng J, Wang L D, Li D, et al. Thermal expansion behavior of copper matrix composite containing negative thermal expansion PbTiO₃ particles. *Mater Des*, 2017, 132: 442–447
- 18 Gu J, Liang C, Zhao X, et al. Highly thermally conductive flame-retardant epoxy nanocomposites with reduced ignitability and excellent electrical conductivities. *Compos Sci Tech*, 2017, 139: 83–89
- 19 Bakshi S R, Lahiri D, Agarwal A. Carbon nanotube reinforced metal matrix composites: A review. *Int Mater Rev*, 2013, 55: 41–64
- 20 Luo X, Yang Y, Li J, et al. Effect of nickel on the interface and mechanical properties of SiC_f/Cu composites. *J Alloys Compd*, 2009, 469: 237–243
- 21 Tang Y, Liu L, Li W, et al. Interface characteristics and mechanical properties of short carbon fibers/Al composites with different coatings. *Appl Surf Sci*, 2009, 255: 4393–4400
- 22 Rajan T P D, Pillai R M, Pai B C. Reinforcement coatings and interfaces in aluminium metal matrix composites. *J Mater Sci*, 1998, 33: 3491–3503
- 23 Brockner W, Ehrhardt C, Gjikaj M. Thermal decomposition of nickel nitrate hexahydrate, Ni(NO₃)₂·6H₂O, in comparison to Co(NO₃)₂·6H₂O and Ca(NO₃)₂·4H₂O. *Thermochim Acta*, 2007, 456: 64–68
- 24 Mitra R, Mahajan Y R. Interfaces in discontinuously reinforced metal matrix composites: An overview. *Bull Mater Sci*, 1995, 18: 405–434
- 25 Roberts N A, Walker D G. A review of thermal rectification observations and models in solid materials. *Int J Thermal Sci*, 2011, 50: 648–662
- 26 Wang Y, Sheng J, Wang L, et al. Enhanced thermal and mechanical properties of Sr_{0.2}Ba_{0.8}TiO₃/Cu composites by introducing Cu₂O interface coating. *Mater Des*, 2019, 166: 107594

Effect of NiO interface coating on thermal and mechanical properties in $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{Cu}$ matrix composites

SHENG Jie^{1,2}, CHEN WanXiaoNan³, WANG LiDong³, WANG Miao³, YANG ZiYue³,
SHI ZhenDong³, ZHANG XingHong², FEI WeiDong³ & HAN JieCai^{1,2}

¹ Laboratory for Space Environment and Physical Science, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China;

² National Key Laboratory of Science and Technology on Advanced Composites in Special Environments, Center for Composite Materials and Structures, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China;

³ School of Materials Science and Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China

$\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ (BST) particles are an effective reinforcement to reduce the coefficient of thermal expansion of Cu composites because of their negative thermal expansion behavior during phase transformation. However, improving interface bonding is still the key point to further study. In this study, NiO interface coating is employed in the BST/Cu composite to improve interface bonding. NiO interface coating of the composite broadens the phase transformation temperature range of BST particles. Accordingly, the average thermal expansion of the composite in the temperature range of 30–250°C is reduced from 12.99×10^{-6} to $11.71 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$. In addition, the mechanical properties of the composite are considerably enhanced. In specific, the yield strength and the compressive strength are increased by 72.8% and 41.3%, respectively. This work verifies that NiO interface coating can effectively improve the interface bonding in the BST/Cu composite and further enhance the properties of the composite. The results imply that the NiO-BST/Cu composite has great potential for application in the future.

Cu matrix composite, $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$, NiO interface coating, low thermal expansion

doi: [10.1360/SST-2020-0154](https://doi.org/10.1360/SST-2020-0154)