

DOI: 10.13957/j.cnki.tcxh.2018.01.002

高热导率氮化硅散热基板材料的研究进展

刘雄章, 郭冉, 李青达, 衣雪梅
(西北农林科技大学 机械与电子工程学院, 陕西 杨凌 712100)

摘要: 针对越来越明显的大功率电子元器件的散热问题, 主要综述了目前氮化硅陶瓷作为散热基板材料的研究进展。对影响氮化硅陶瓷热导率的因素、制备高热导率氮化硅陶瓷的方法、烧结助剂的选择、以及氮化硅陶瓷机械性能和介电性能等方面的最新研究进展作了详细论述, 最后总结了高热导率氮化硅作为散热基板材料的发展趋势。

关键词: 氮化硅; 热导率; 散热基板; 机械性能

中图分类号: TQ174.75

文献标识码: A

文章编号: 1000-2278(2018)01-0006-07

Research Progress on High Thermal Conductivity Silicon Nitride as Heat Dissipation Substrate

LIU Xiongzhang, GUO Ran, LI Qingda, YI Xuemei

(School of Mechanical and Electronic Engineering, Northwest A & F University, Yangling 712100, Shaanxi, China)

Abstract: In view of the heat dissipation of high-power electronic devices, the research progress of silicon nitride ceramics as a heat sink material is reviewed. Then the effect of the main factors on the thermal conductivity, the preparation method, the sintering additives during sintering process, and the mechanical and dielectric properties of silicon nitride ceramics are detailedly discussed. Finally, the future prospect of silicon nitride ceramics as heat dissipation substrate material is predicted.

Key words: silicon nitride; thermal conductivity; heat dissipation substrate; mechanical properties

0 引言

随着我国高铁、航天、军工等领域的快速发展, 未来对大功率电力电子器件的需求也将越来越大。为了适应更加复杂、苛刻的应用条件, 大功率电力电子器件朝着高温、高频、低功耗以及智能化、模块化、系统化方向发展, 这对整个电子器件的散热提出了严峻的挑战, 而功率器件中基板的作用是吸收芯片产生的热量, 并传到热沉上, 实现与外界的热交换^[1], 所以制备高热导率基板材料成为研发大功率模块电子产品的关键所在。例如目前大功率LED的发光效率仅有 10%~20%^[2], 其余的能量则转化为热能, 如果芯片的热量不能及时的散出去, 就会影响芯片的出光效率, 或者缩短芯片使用寿命甚至失效^[3]。近年, 大功率IGBT电子模块在混合动力/电动汽车的电机驱动、电池充电、电平转

换等重要子系统中得到了广泛应用, 由于混合动力/电动汽车中IGBT模块靠近发热量大的热源, 芯片的温度有可能高达175 ℃, 甚至更高, 同时混合动力/电动汽车上空间要求很苛刻, 这进一步增加了散热的难度^[4]。因此, 未来芯片发热量高、热应变大、要求环保无污染等应用状况对散热基板材料提出了更新、更高的要求^[5]。

大功率散热基板材料要求具有低成本、高电绝缘性、高稳定性、高导热性及与芯片匹配的热膨胀系数(CTE)、平整性和较高的强度等^[6]。为了满足这些要求, 人们将目光投向了金属氧化物、陶瓷、聚合物、复合材料等。主要应用的散热基板材料有 Al_2O_3 、 AlN 、 BeO 、 SiC 、 BN 、 Si 等。

金属氧化物 Al_2O_3 , 虽然具有机械强度高、耐热冲击和介质损耗小等优点, 但因为具有较低的热导率且高纯氧化铝难以烧结造价昂贵, 故已不能满足

收稿日期: 2017-03-19。 修订日期: 2017-06-12。
基金项目: 陕西省引进人才专项基金(Z11021201); 西北科技大学国际合作种子基金(A213021607)。
通信联系人: 衣雪梅(1976-), 女, 博士, 副教授。

Received date: 2017-03-19. Revised date: 2017-06-12.
Correspondent author: YI Xuemei(1976-), female, Ph.D., Associate professor.
E-mail: xuemei_yi@nwsuaf.edu.cn

大功率散热基板材料的要求^[3]; BeO热导率高,但其线膨胀系数与Si相差很大,高温时热导率急剧下降且制造时有毒,限制了其应用范围^[7]; BN虽然具有较好的综合性能,但作为基板材料价格太昂贵,目前只处于研究和推广之中; SiC^[8]具有高强度和高热导率,但其电阻和绝缘耐压值都较低,介电常数偏大,不宜作为基板材料。硅作为散热基板材料加工困难,成本高;单一金属材料具有导电及热膨胀系数失配等问题,因此以上材料很难满足未来大功率散热基板材料的苛刻要求^[3]。

到目前为止,人们研究发现,AlN表现出高达200 W/(m·K)^[9]的热导率,因此AlN高热导率散热材料已开始被应用在一些重要的大功率电子芯片的散热基板中。然而,由于AlN的机械性能不能充分满足大功率散热基板材料的要求(一般来说,弯曲强度300–400 MPa,断裂韧性3–4 MPa·m^{1/2}),导致基板可靠性低。同时AlN的烧结温度很高(1900℃左右)且在水中容易水解形成偏铝酸,这也限制了AlN的应用。研究者们迫切希望寻求一种可替代AlN的具有高热导率和优良综合性能的散热基板材料,因此人们把注意力转向Si₃N₄陶瓷材料^[9]。

Si₃N₄是一种共价键化合物,主要有α和β两种晶体结构,均为六角晶形。其中β-Si₃N₄在平均原子量、原子键键强等方面与碳化硅、氮化铝较为相似,但结构相对复杂对声子散射比较大,故在早期阶段人们认为氮化硅的热导率很低^[10]。直到1995年, Haggerty等^[11]提出复杂的晶体结构并非氮化硅低热导率的原因,而是晶格内缺陷、杂质等原因,并预测β-Si₃N₄陶瓷热导率可以达到200–320 W/(m·K)。在1999年, Watar等^[12]用热等静压法在温度2773 K、氮气压力200 MPa的条件下制备出了热导率为155 W/(m·K)氮化硅陶瓷,用实验的方法证明了氮化硅陶瓷具有很高的热导率。此外,研究者们对Si₃N₄热膨胀系数、机械性能、抗氧化性、电绝缘性、对环境的影响等方面分别进行了不懈的研究,发现均能获得令人满意的结果,因此氮化硅被认为是一种很有潜力的高速电路和大功率电子器件散热基板和封装材料^[13–15]。

1 高热导率氮化硅陶瓷的影响因素

高热导率氮化硅陶瓷是获得高热导率氮化硅散热基板的前提,而影响氮化硅陶瓷热导率的因素很多。例如,氮化硅陶瓷的致密度、相组成、烧结时晶种的加入、晶格氧含量、晶粒的尺寸、形状、排列

方式等都对氮化硅陶瓷的热导率有着巨大的影响^[16]。

在制备氮化硅陶瓷中,反应物中的孔隙率为12%–25%^[17],而气体的热导率一般较低,故致密度越大,孔隙率越低,热导率越高。氮化硅具有α和β两种晶体相,其中α相中的氧含量高于β相中的氧含量,而氧杂质对声子具有散射的作用,因此氮化硅陶瓷中β/α的值越大,热导率越高。当烧结高热导率氮化硅陶瓷时,在Si₃N₄原料中加入尺寸较大的β-Si₃N₄晶种,为β-Si₃N₄晶粒的结晶提供晶核,将晶界相逐渐排挤进入多晶交界处,从而提高热导率。Naoto, Hirosaki等^[18]用β-Si₃N₄作为原料,研究添加0.5wt.%的大粒径β-Si₃N₄作为晶种和不添加晶种的氮化硅陶瓷热导率的差别,均在温度为1900℃,氮气压力为10 MPa的条件下用气压烧结的方法制备氮化硅陶瓷。结果表明,添加晶种的氮化硅陶瓷热导率为106 W/(m·K),而不加晶种的氮化硅陶瓷只有77 W/(m·K)。声子运动的一个重要参数是声子的运动自由程,理论上晶粒尺寸与其平均自由程为相同数量级时,晶界对声子造成散射。而在一般情况下,除反应烧结外, Si₃N₄烧结体的晶粒尺寸均为微米级,远大于声子间的平均自由程^[16],所以Si₃N₄晶粒尺寸对Si₃N₄的热导率没有直接影响,但是随着Si₃N₄晶粒尺寸的增大,晶间相的分布会有所变化,相邻两个晶粒间的晶间相薄层数量会减少,因而,在一定尺寸范围内,晶粒的增大可以提高Si₃N₄的热导率^[19]。单晶β-Si₃N₄颗粒沿c和a两个轴的热导率分别可达180 W/(m·K)和69 W/(m·K)^[20],氮化硅陶瓷中颗粒的定向排列可以充分发挥β-Si₃N₄热导率各向异性的特点,获得在某一方向上热导率较高的氮化硅陶瓷^[21, 22]。例如Watar等^[23]在烧结时加入β-Si₃N₄晶种,采用流延成型工艺使晶粒定向排列,得到在平行和垂直流延成型方向上分别为155 W/(m·K)和52 W/(m·K)的导热率,虽然在某一方向上热导率有较大的提高,但是热导率存在各向异性限制了其应用范围。

2 高热导率氮化硅陶瓷的制备方法

目前,氮化硅陶瓷的烧结方法主要有反应烧结法(RS)、热压烧结法(HPS)、常压烧结法(PLS)和气压烧结法(GPS)等^[24]。

2.1 反应烧结法

制备氮化硅最早使用的方法。先将硅粉和粘结剂通过干压、等静压等方法成型后,再在1200–1500℃温度条件下氮化烧结得到氮化硅陶瓷。反应烧结

法具有烧结前后线收缩率低、成本低的优点,但也有致密度小,力学性能差的缺点。适合制造形状复杂,尺寸精确的零件^[24]。邬凤英、庄汉锐等^[25]在实验中按名义组成 $\text{Si}_3\text{N}_4 > 80\text{wt.}\%$, $(\text{Y}_2\text{O}_3 + \text{La}_2\text{O}_3) < 20\text{wt.}\%$ 加入Si粉、 Y_2O_3 粉和 La_2O_3 粉进行混合成型。然后在1200–1500 °C下反应烧结,并将反应烧结的初坯置于气压烧结炉内,在1–9 MPa N_2 压力和1900 °C的条件下保温3小时,制备了氮化硅陶瓷。并检验了其热导率,在1000 °C时热导率为19.43 W/(m·K),在1200 °C的热导率为17.59 W/(m·K)。

2.2 热压烧结法

在原料 Si_3N_4 粉中加入少量添加剂(如 MgO 、 Al_2O_3 、 MgF_2 、 Fe_2O_3 等),再加15–40 MPa的机械压力在氮气气氛下和1600 °C以上的温度进行烧结的方法。该方法具有成本高、烧结工艺复杂、烧结体收缩大但烧结成的氮化硅陶瓷密度高,材料力学性能优异的特点,常被用来制造形状简单的零件制品。张琳等^[26]在研究高热导率 $\text{AlN/Si}_3\text{N}_4$ 复合陶瓷材料时,在 Si_3N_4 中添加含量为20wt.%的 AlN ,以 La_2O_3 为烧结助剂,采用热压烧结的方法,在温度为1750 °C、氮气压力为30 GPa的条件下制备出的氮化硅陶瓷最佳热导率为35 W/(m·K),制备出的热导率偏低,主要的原因可能是 AlN 的加入引入了Al杂质,形成了塞隆相,即晶界相增加导致陶瓷热导率和致密度的降低,但是该陶瓷的机械性能较好,仍具有很大的应用价值。

2.3 常压烧结法

将氮化硅粉与烧结助剂均匀混合、成型,在1700–1800 °C温度范围内进行常压烧结后,再在1800–2000 °C温度范围内进行气压烧结。采用气压能促进 Si_3N_4 陶瓷组织致密化,从而提高陶瓷的强度^[25]。该方法制造成本偏高,精度得不到控制。Thanakorn等^[27]先在1650 °C、0.1 MPa N_2 中无压烧结2 h后升至1950 °C,在1.0 MPa N_2 中保温8 h制得了热导率为90 W/(m·K)的 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 陶瓷。刘文彬,熊宁等^[28]以氮化硅喷雾造粒粉为原料,分别用高温常压烧结和热等静压处理烧坯两种方法制备氮化硅陶瓷材料,其中。在高温常压烧结中,氮化硅烧结温度 (1800 ± 10) °C,保温时间40 min,氮气作为保护气氛。在热等静压处理中,氮化硅烧结坯处理温度 (1720 ± 20) °C,压力150–200 MPa,保温时间1.5 h。分别得到了热导率为19.4和19.8 W/(m·K)的氮化硅陶瓷。并比较研究了它们抗热震性、抗热冲击性,表明氮化硅陶瓷经过热等静压处理性能均得到提高。

2.4 气压烧结法

气压烧结(Gas Pressure Sintering, 简称为GPS)是指将陶瓷素坯在高温烧结过程中,施加一定的压力为1–10 MPa气体(通常为 N_2 气),抑制在高温下氮化硅陶瓷的分解,从而可提高烧结温度,进一步促进材料的致密化,获得高密度的陶瓷制品^[29]。气压烧结氮化硅陶瓷主要分两步进行,且第二步比第一步氮气压力和烧结温度都更高。在第一步中烧结助剂熔化, Si_3N_4 晶粒重排, $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 转化为 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 及溶解-析出过程中部分晶粒发生长大。第二步中材料烧结温度升高, Si_3N_4 通过液相扩散过程加快,晶粒快速长大^[30]。范德蔚等^[31]采用气压烧结的方法,加入 MgO 、 Y_2O_3 及 CeO_2 作为复合烧结助剂,在1800 °C、4 MPa氮气压力下烧结4小时合成了氮化硅陶瓷。当烧结助剂总量为8wt.% (4wt.% MgO + 3wt.% Y_2O_3 + 1wt.% CeO_2),热导率达到最大值44 W/(m·K)。很显然,热导率提高的并不明显,这可能是由于烧结助剂的种类太多引入了过多的金属杂质和氧元素。

2.5 放电等离子烧结法

放电等离子烧结(spark plasma sintering, SPS)又称为PAS(plasma active sintering)即“等离子活化烧结”,是一种快速烧结新技术。烧结时直接将脉冲电流施加在石墨磨模具上,可以达到很高的升温速率^[32],使氮化硅陶瓷中的 $\alpha \rightarrow \beta$ 的相变可以在瞬间进行和完成,最大程度地实现氮化硅陶瓷的低温快速烧结^[33]。彭萌萌、宁晓山等^[34]在实验中用自蔓延高温合成法合成的 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 粉和普通的 $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 粉, Y_2O_3 和 MgO 复合添加剂,经过放电等离子烧结(SPS)后再进行高温热处理,得出随着SPS保温时间延长,热导率先上升后下降,在5 min时热导率有最大值105 W/(m·K)的结论。这是因为在开始时保温时间不超过2 min烧结不充分,所以随着保温时间增加,热导率增加,当保温时间10 min时产生过烧,此时氮化硅陶瓷密度较低,导致热导率低。张洁、宁晓山等^[35]用 $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-MgO}$, $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-CaO}$, $\text{CeO}_2\text{-MgO}$, $\text{CeO}_2\text{-CaO}$, $\text{La}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 和 $\text{La}_2\text{O}_3\text{-CaO}$ 共6组烧结助剂,采用放电等离子烧结再热处理的工艺制备氮化硅陶瓷,结果表明:当采用 $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 烧结助剂和适当的烧结工艺,得到氮化硅陶瓷热导率最高可达到80 W/(m·K)以上,且具有较好的机械性能和介电性能。

3 高热导率氮化硅陶瓷添加剂的选择

氮化硅是共价化合物,晶体结构复杂,硅原子和

氮原子的自扩散系数很低, 导致氮化硅粉末烧结驱动力小, 很难烧结。因此研究者们提出在烧结时加入少量烧结添加剂, 通过添加剂与氮化硅粉末表面形成的 SiO_2 层反应形成液相来实现致密化烧结^[36], 达到在较低温度下就能得到烧结致密的氮化硅陶瓷的目的, 从而提高热导率^[37]。经过实验研究表明, 烧结助剂一方面可以降低氮化硅陶瓷的烧结温度, 增加氮化硅陶瓷中的 $\alpha \rightarrow \beta$ 的相变, 获得 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 含量高的氮化硅陶瓷, 另一方面有利于长柱状氮化硅晶粒的生长, 从而提高氮化硅陶瓷的热导率、高温性能以及机械性能。近年来, 人们对烧结助剂的研究由单一添加剂向两种或两种以上的复合添加剂发展, 并且得出结论, 采用两种或两种以上添加剂构成的复合添加剂, 可改善液相粘度, 提高晶间相的软化温度和高温性能。但是, 人们在烧结氮化硅陶瓷时发现, 氧化物烧结助剂的引入还会导致 Si_3N_4 晶格氧含量的提高, 另外某些烧结助剂会固溶入 Si_3N_4 晶格形成固溶体, 从而影响氮化硅陶瓷热导率的提高^[38]。目前选择烧结添加剂多基于控制液相粘度, 提高相转变, 防止固溶体的形成, 降低晶格氧含量以及控制玻璃相组成和含量等几方面, 常用烧结添加剂有稀土金属氧化物、氮化硅镁、氧化铝等。

所以为了获得高热导率陶瓷, 所选的烧结添加剂应具有以下优点: (1)在烧结过程中能促进 $\alpha \rightarrow \beta$ 的相变, 获得高 β 相含量的氮化硅陶瓷; (2)可以促进晶粒生长、发育, 从而提高热导率; (3)烧结助剂应该尽量少引入氧杂质及其它杂质; (4)防止烧结过程中固溶体的形成。Sung等^[39]在烧结氮化硅陶瓷时加入 AlN 作为烧结添加剂, 研究其不同含量对氮化硅热导率的影响, 结果发现在烧结中 AlN 抑制了 $\alpha\text{-}\beta$ 相转变, 并且 AlN 含量越多, 相组成中 α/β 越大, 氮化硅热导率越低。Kitayama^[19]等认为稀土离子(如 La^{3+} 、 Nd^{3+} 、 Gd^{3+} 、 Y^{3+} 、 Yb^{3+} 、 Sc^{3+} 等)在氮化硅烧结中的液相粘度随稀土离子半径的减小而增大, 扩散速率下降, 烧结动力由界面反应控制逐渐过渡为扩散传质控制, 使得晶粒发育更为完善, 热导率逐渐提高。由于晶格氧含量对氮化硅陶瓷的热导率影响较大, 梁振华、彭桂花等^[40]分别以 MgSiN_2 和 MgSiN_2 与 Y_2O_3 的混合物作为烧结助剂, 在 1750°C 下采用热压烧结法制备了高热导率 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 陶瓷。热导率的测试结果表明, 以 MgSiN_2 作为烧结助剂的热导率为 $90\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, 而以 MgSiN_2 与 Y_2O_3 的混合物作为烧结助剂的热导率只有 $70\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 。Hayashid等^[41]以 $\text{Yb}_2\text{O}_3\text{-MgSiN}_2$ 和 $\text{Yb}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 作为烧结助剂, 通过气压烧结制备了

氮化硅陶瓷, 并对热导率进行了检测。结果发现, 采用 $\text{Yb}_2\text{O}_3\text{-MgSiN}_2$ 复合烧结助剂制备的 Si_3N_4 陶瓷热导率更高(最高可达 $140\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$)。这是由于当晶粒尺寸较大时(晶粒尺寸 $>1\text{ }\mu\text{m}$), MgSiN_2 不会在晶格中引入氧杂质, 故热导率较高。

4 高热导率氮化硅陶瓷的力学性能和介电性能

经过各国研究者的不断努力, 目前氮化硅陶瓷的热导率得到了大幅度的提升, You Zhou等^[9]用反应烧结重烧结的方法, 即先用气压烧结的方法烧结成致密的 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 陶瓷, 然后在 1900°C 下再次烧结60小时, 得到了目前为止热导率最高的氮化硅陶瓷为 $177\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 。因此氮化硅被认为是未来的大功率散热基板材料。但是作为大功率散热基板材料, 也必须具备良好的力学性能和介电性能, 其中力学性能主要有弯曲强度、抗热震性、断裂韧性等方面。介电性能则主要是介电损耗和介电常数, 作为大功率氮化硅散热基板材料, 应该具有较低的介电损耗和介电常数。

目前, 人们对高热导率陶瓷力学性能、电学性能的研究逐渐增多。李永霞等^[42]系统研究了烧结助剂含量对氮化硅陶瓷的力学性能、热导率的影响。在实验中, 选择 $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 粉为原料, CeO_2 为烧结助剂, 在烧结温度为 1800°C , 氮气压力 30 MPa 的条件下用热压烧结的方法制备出高致密的氮化硅陶瓷。研究表明, 烧结助剂的含量对氮化硅陶瓷的力学性能影响巨大。当 CeO_2 含量为 $2\text{ mol}\%$ 时, 材料的弯曲强度和断裂韧性都达到最大, 分别为 1067.2 MPa 和 $8.31\text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 。当 CeO_2 含量为 $7\text{ mol}\%$ 时, 氮化硅陶瓷材料热导率增加最多为 38.7% 。

刘文彬, 熊宁等^[28]通过常压烧结制备出高致密度烧结坯, 随后放入热等静压设备中进一步致密化处理来提高材料的抗热震性能。结果表明, 采用热等静压烧结处理过的氮化硅陶瓷抗热震温度能提高 100°C 。在该实验中, 作者用临界应力断裂理论抗热冲击参数 R 从理论上表明氮化硅陶瓷经过热等静压处理性能得到提高。但是热等静压处理提高抗热震性的机理还有待进一步分析研究。白晓杰等^[43]以 Si_3N_4 微粉、 Si 粉、 C 粉为原料, 加入 MgO 和 Y_2O_3 为烧结助剂, 用热压烧结法制备了 $\text{SiC}/\text{Si}_3\text{N}_4$ 复合材料。研究了烧结温度和 Si 、 C 的加入量对该复合材料的抗热震性能的影响, 并初步探讨了抗热震机理。结果表明: 当烧结温度为 1850°C , Si 、 C 的含

量为5wt.%时,其抗热震性能最好,热震残余强度在临界热震温差处比单相 Si_3N_4 陶瓷提高了9.6%。抗热震性能的提高是高热导率、高强度、高韧性综合作用的结果,线膨胀系数低导致在受到热冲击时内部的瞬时热应力较小;材料的强度高,断裂时就可以吸收更多的弹性应变能;材料的韧性好,可以吸收更多的断裂能。因此该材料的抗热震性能提高。

为了满足大功率电子器件高速化、高可靠性的要求,当氮化硅陶瓷作为大功率基板散热材料时,必须减少基板的背景噪音。这就要求氮化硅陶瓷介电常数应小于10,介电损耗在 10^{-3} 数量级^[44]。范德蔚^[31]等探讨了氮化硅陶瓷的致密度与介电常数、介电损耗的关系,发现随着致密度的提高,介电常数增大。而在一定范围内,随着致密度的提高,材料的介电损耗降低,但是当致密度达到96.7%时,介电损耗却在升高。这可能是由于较多的烧结助剂的加入导致产生了较多的玻璃相,而玻璃相会使材料的介电损耗增加。Xu W等^[45]用 MgO 和 CeO_2 作为烧结助剂,研究了在1850℃和1900℃保温4h的 β - Si_3N_4 陶瓷的热导率和介电常数,发现其热导率分别为46 W/(m·K)和79 W/(m·K),体电阻分别为 $2.72 \times 10^{11} \Omega$ 和 $3.13 \times 10^{11} \Omega$,相对介电常数为8.76和8.85。可以看出,烧结温度对介电常数有影响,但是在该文中并没有探讨介电常数受温度影响的原因。Miyazaki H等^[46]在研究烧结助剂的含量与 β - Si_3N_4 陶瓷的介电性质的关系中,发现通过在1300℃保温24h使玻璃相晶化,可以有效降低介电损耗,但对介电常数的影响很小。因此,未来关于大功率氮化硅散热基板材料介电常数、介电损耗的发展方向是研究氮化硅陶瓷的致密度、烧结助剂的种类和含量以及烧结温度对介电常数、介电损耗的影响,以得到综合性能优异的氮化硅陶瓷。

5 总结

研究证明,氮化硅陶瓷具有高热导率、热膨胀系数与芯片匹配,机械性能好、抗氧化能力强、电绝缘性好、对环境无污染等优点,因此是未来大功率散热基板的首选材料。自从发现氮化硅陶瓷具有高热导率后,获得接近理论热导率的氮化硅陶瓷一直处于研究的热点。尤其是近年来,人们为了解决高热导率氮化硅陶瓷的实际应用问题,逐渐增加了对它机械性能、介电性能的研究,并取得了一系列的成果。本文主要从氮化硅陶瓷热导率的影响因素、制备方法、烧结助剂的选择、以及氮化硅陶瓷

机械性能和介电性能等方面综述了最新的研究进展。并根据大功率散热基板材料的应用要求,提出了一些高热导率氮化硅作为散热基板材料的发展趋势,主要包括:

(1)低成本氮化硅陶瓷的制备:目前,高热导率氮化硅陶瓷的烧结温度一般在1600–1900℃,制备原料为高纯 α - Si_3N_4 粉或者高纯硅粉,在烧结过程中还要添加烧结助剂,这些都极大的增加了氮化硅陶瓷的制备成本,限制了其在工业中的广泛应用。因此在提高热导率的同时,低温制备、寻找低成本原料、低成本烧结助剂仍是未来的发展趋势。

(2)氮化硅陶瓷增韧的研究:由于大功率电子器件的形式多种多样,散热基板也必须朝着多样化方面发展。这就要求作为基板的材料具有良好的加工性能。硬而脆是陶瓷的特点,导致加工成型困难,从而增加了加工成本。因此研究氮化硅陶瓷的加工成型技术及制备和增强氮化硅陶瓷韧性是未来的发展方向。

(3)高热导率氮化硅陶瓷热导率、机械性能和介电性能方面的研究:目前文献报道的实验制备出氮化硅陶瓷的热导率最大为177 W/(m·K),但是其制备条件苛刻,不适用大规模生产。因此研究开发简单有效的制备方法提高氮化硅的热导率也是研究的发展方向之一;同时虽然对氮化硅陶瓷的机械性能和介电性能的研究已取得了一些成果,但现阶段研究还主要集中在烧结温度、烧结助剂种类和含量、致密度等各单量对机械性能和介电性能的简单影响关系,而各种综合条件对机械性能和介电性能的深层次影响机理的研究还处于初级阶段。

(4)对烧结助剂的研究趋向于低成本、无氧化合物或者能够降低晶格中氧含量等方向。由于烧结助剂能够降低烧结温度,促进氮化硅的扩散结晶,因此是目前烧结氮化硅陶瓷的必备成分。为了降低氮化硅陶瓷的成本,要求烧结助剂的成分越低越好,同时因为氧元素存在会降低热导率,因此未来对不含氧元素、或者能够除去氮化硅中本身氧元素的烧结助剂研究将会增加。

参考文献:

- [1] 俞晓东, 何洪, 宋秀峰, 等. 功率电子模块及其封装技术[J]. 电子与封装. 2009, 9(11): 5–11.
- [2] YU X D, HE H, SONG X F, et al. Electronics & Packaging, 2009, 9(11): 5–11.
- [3] 谭敦强, 陈强, 刘阳, 等. 功率型LED散热基板制备研究[J]. 江西科学, 2013, (02): 204–209.

- TAN D Q, CHENG Q, LIU Y, et al. Jiangxi Science, 2013, (02): 204–209.
- [3]陈强, 谭敦强, 余方新, 等. 功率型LED散热基板的研究进展[J]. 材料导报, 2009, 12(23): 61–64.
- CHENG Q, TAN D Q, YU F X, et al. Materials Review, 2009, 12(23): 61–64.
- [4]徐凝华, 吴义伯, 刘国友, 等. 混合动力/电动汽车用IGBT功率模块的最新封装技术[J]. 大功率变流技术, 2013, (01): 1–6.
- XU N H, WU Y B, LIU G Y, et al. High Power Converter Technology, 2013, (01): 1–6.
- [5]刘一兵, 丁洁. 功率型LED封装技术[J]. 液晶与显示, 2008, (04): 508–513.
- LIU Y B, DING J. Chinese Journal of Liquid Crystals and Displays, 2008, (04): 508–513.
- [6]李华平, 柴广跃, 彭文达, 等. 大功率LED的封装及其散热基板研究[J]. 半导体光电, 2007, (01): 47–50.
- LI H P, CHAI G Y, PENG W D, et al. Semiconductor Optoelectronics, 2007, (01): 47–50.
- [7]赵赞良, 唐政维, 蔡雪梅, 等. 比较几种大功率LED封装基板材料[J]. 装备制造技术, 2006, (04): 81–84.
- ZHAO Z L, TANG Z W, CAI X M, et al. Equipment Manufacturing Technology, 2006, (04): 81–84.
- [8]石功奇, 王健, 丁培道. 陶瓷基片材料的研究现状[J]. 功能材料, 1993, (02): 176–180.
- SHI G Q, WANG J, DING P D. Journal of Functional Materials, 1993, (02): 176–180.
- [9]ZHOU Y, HYUGA H, KUSANO D, et al. Development of high-thermal-conductivity silicon nitride ceramics [J]. Journal of Asian Ceramic Societies. 2015, 3(3): 221–229.
- [10]徐鹏, 杨建, 丘泰. 高导热氮化硅陶瓷制备的研究进展[J]. 硅酸盐通报, 2010, (02): 384–389.
- XU P, YANG J, QIU T. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2010, (02): 384–389.
- [11]HAGGERTY J S, LIGHTFOOT A. Opportunities for enhancing the thermal conductivities of SiC and Si₃N₄ ceramics through improved processing [C]// Proceedings of the 19th Annual Conference on Composites, Advanced Ceramics, Materials, and Structures A: Ceramic Engineering and Science Proceedings, 2008, 16(4): 475–487.
- [12]WATARI K, HIRAO K, BRITO M E. Hot isostatic pressing to increase thermal conductivity of Si₃N₄ ceramics [J]. Journal of Materials Research, 1999, 14(4): 1538–1541.
- [13]WASANAPIARNPONG T, WADA S, IMAI M, et al. Effect of post-sintering heat-treatment on thermal and mechanical properties of Si₃N₄ ceramics sintered with different additives [J]. Journal of the European Ceramic Society. 2006, 26(15): 3467–3475.
- [14]HIRAO K, WATARI K. High thermal conductivity silicon nitride ceramic [J]. Journal of the Korean Ceramic Society. 2001, 49(4): 451–455.
- [15]加曾利光男, 堀口昭宏, 角野裕康, 等. 氮化硅陶瓷电路基片及使用该陶瓷基片的半导体器件[P]. CN.1149666 C. 1996.
- [16]王甜, 龙思远, 王朋. Si₃N₄陶瓷高导热性的研究现状及发展趋势[J]. 功能材料, 2015, (08): 8009–8012.
- WANG T, LONG S Y, WANG P. Journal of Functional Materials, 2015, (08): 8009–8012.
- [17]谢志鹏. 结构陶瓷[M]. 北京: 清华大学出版社, 2011.
- [18]HIROSAKI N, OKAMOTO Y, ANDO M, et al. Effect of grain growth on the thermal conductivity of silicon nitride [J]. Journal of the Ceramic Society of Japan. 1996, 104(104): 49–53.
- [19]KITAYAMA M, HIRAO K, WATARI K, et al. Thermal conductivity of β -Si₃N₄: III, Effect of rare-earth (RE = La, Nd, Gd, Y, Yb, and Sc) oxide additives [J]. Journal of the American Ceramic Society. 2001, 84(2): 353–358.
- [20]RAO A S. Effect of whisker orientation on the mechanical properties of silicon carbide/alumina composites [J]. Interim Report, 1992.
- [21]OKADA A, HIRAO K. Conduction mechanisms and development of high thermal conductive silicon nitrides [J]. Ceramics Japan. 2004, 39: 172–176.
- [22]HIRAO K. Development of ceramic substrates with high thermal conductivity (in Japanese) [J].
- [23]WATARI K. High thermal conductivity of non-oxide ceramics [J]. Journal of the Ceramic Society of Japan. 2001, 109(1265): S7–S16.
- [24]唐甜甜. 氮化硅陶瓷的研究[J]. 吉林省教育学院学报(中旬), 2014, (05): 153–154.
- TANG T T. Journal of Educational Institute of Jilin Province, 2014, (05): 153–154.
- [25]郭凤英, 庄汉锐, 马利泰, 等. 氮气压力对烧结氮化硅性能和显微结构的影响[J]. 无机材料学报, 1991, (02): 160–165.
- WU F Y, ZHUANG H R, MA L T, et al. Journal of Inorganic Materials, 1991, (02): 160–165.
- [26]张琳. 高热导率AlN/Si₃N₄复合陶瓷材料制备技术及性能研究[D]. 山东大学, 2014.
- [27]LEE S W, CHAE H B, PARK D S, et al. Thermal conductivity of unidirectionally oriented Si₃N₄w/Si₃N₄ composites [J]. Journal of Materials Science, 2000, 35(18): 4487–4493.
- [28]刘文彬, 熊宁, 王铁军, 等. 氮化硅陶瓷的热等静压处理与抗热震性能研究[J]. 硅酸盐通报, 2015, (01): 213–216.

- LIU W B, XIONG N, WANG T J, et al. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2015, (01): 213–216.
- [29]杨亮亮, 谢志鹏, 李双, 等. 气压烧结氮化硅陶瓷的研究与应用进展[J]. 陶瓷学报, 2014, (05): 457–464.
- YANG L L, XIE Z P, LI S, et al. Journal of Ceramics, 2014, (05): 457–464.
- [30]肖钢, 刘曙红. 气压烧结——一种大有前途的氮化硅陶瓷制备方法[J]. 硬质合金, 2001, (03): 187–192.
- XIAO G, LIU S H. Cemented Carbide, 2001, (03): 187–192.
- [31]范德蔚. 高导热氮化硅陶瓷的制备及性能研究[D]. 山东理工大学, 2012.
- [32]SUGANUMA M, KITAGAWA Y, WADA S, et al. Pulsed electric current sintering of silicon nitride [J]. Journal of The American Ceramic Society. 2003, 86(3): 387–394.
- [33]HERRMANN M, SHEN Z J, SCHULZ I, et al. Silicon nitride nanoceramics densified by dynamic grain sliding [J]. Journal of Materials Research. 2010, 25(12): 2354–2361.
- [34]彭萌萌, 宁晓山. β -氮化硅粉烧结氮化硅陶瓷热导率[J]. 稀有金属材料与工程, 2013, (s1): 404–407.
- PENG M M, NING X S. Rare Metal Materials and Engineering, 2013, (s1): 404–407.
- [35]张洁, 宁晓山, 吕鑫, 等. 含稀土助烧剂氮化硅陶瓷的热导率、强度及电学性能[J]. 稀有金属材料与工程, 2008, 37(s1): 693–696.
- ZHANG J, NING X S, LV X, et al. Rare Metal Materials and Engineering, 2008, 37(s1): 693–696.
- [36]杜大明, 魏圣泉, 江晓东, 等. 稀土氧化物对 Si_3N_4 陶瓷力学性能和显微组织的影响[J]. 陶瓷学报, 2012, (01): 66–68.
- DU D M, WEI S L, JIANG X D, et al. Journal of Ceramics, 2012, (01): 66–68.
- [37]刘剑, 谢志鹏, 李志坚. 烧结温度对放电等离子烧结氮化硅陶瓷显微结构和力学性能的影响[J]. 硅酸盐学报. 2016, (03): 403–407.
- LIU J, XIE Z P, LI Z J. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2016, (03): 403–407.
- [38]徐鹏, 杨建, 丘泰. 高导热氮化硅陶瓷制备的研究进展[J]. 硅酸盐通报. 2010, (02): 384–389.
- XU P, YANG J, QIU T. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2010, (02): 384–389.
- [39]SUNG R J, LEE S W, NAKAYAMA T, et al. Mechanical and thermal properties of hot-pressed Si_3N_4 with added AlN [M]. 2003: 439, 119–124.
- [40]梁振华, 彭桂花, 李庆余, 等. 以 MgSiN_2 作烧结助剂制备高导热 β - Si_3N_4 陶瓷[J]. 硅酸盐学报, 2010, (10): 1948–1952.
- LIANG Z H, PENG G H, LI Q Y, et al. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2010, (10): 1948–1952.
- [41]KITAYAMA M, HIRAO K, TORIYAMA M, et al. Thermal conductivity of β - Si_3N_4 : I, effects of various microstructural factors [J]. Journal of the American Ceramic Society, 1999, 82(11): 3105–3112.
- [42]李勇霞. 高性能氮化硅的制备及其性能研究[D]. 哈尔滨工业大学, 2013.
- [43]白晓杰. 反应热压烧结制备 $\text{SiC}/\text{Si}_3\text{N}_4$ 复合材料及抗热震性能的研究[D]. 哈尔滨理工大学, 2015.
- [44]WATARI K, SEKI Y, ISHIZAKI K. Thermal properties of HIP sintered silicon nitride [J]. Journal of the Ceramic Society of Japan, 1989, 97(1121): 56–62.
- [45]XU W, NING X S, ZHOU H P, et al. Study of the Thermal Conductivity of Si_3N_4 Sintered with CeO_2 and MgO additives [J]. Key Engineering Materials, 2003, 247(4): 355–360.
- [46]MIYAZAKI H, YOSHIZAWA Y I, HIRAO K. Effect of crystallization of intergranular glassy phases on the dielectric properties of silicon nitride ceramics [J]. Materials Science & Engineering B, 2008, 148(1–3): 257–260.