

L.P. Maiorano<sup>a</sup>, J.M. Molina<sup>a,b</sup><sup>a</sup> Instituto Universitario de Materiales de Alicante, Universidad de Alicante, Ap. 99, E-03080, Alicante, España<sup>b</sup> Departamento de Química Inorgánica, Universidad de Alicante, Ap. 99, E-03080, Alicante, España

## Materiales multicomponente para disipación térmica con estructuras alternadas de espuma de Al y material compuesto Al/D

### RESUMEN

#### Historia del artículo:

Recibido 7 de Junio de 2019

En la versión revisada 20 de Junio de 2019

Aceptado 5 de Julio de 2019

Accesible online 15 de Abril de 2021

#### Palabras clave:

Espuma metálica

Composite metal-diamante

Replicación

Conductividad térmica

Potencia disipada

Los crecientes avances en la industria electrónica, que operan con sistemas cada vez más potentes y con mayores prestaciones, necesitan del desarrollo de nuevos materiales que sean capaces de disipar la elevada cantidad de calor que generan y que, en más del 50% de las ocasiones, es el origen de fallos catastróficos. Las dos grandes aproximaciones en el diseño y fabricación de materiales disipadores de calor radican en los llamados disipadores activos y disipadores pasivos. Los alcances últimos en disipación pasiva provienen de materiales compuestos Al/diamante, que presentan elevadas propiedades térmicas que pueden modularse a través de la manipulación de las interfaces. Por otro lado, las espumas metálicas de poro interconectado han sido ampliamente estudiadas por sus propiedades de disipación activa y su potencialidad como disipadores de calor en electrónica. Estas espumas pueden diseñarse y fabricarse mediante el conocido método de replicación. En este método se fabrica un material compuesto formado por una matriz y unas inclusiones de naturaleza tal que pueden eliminarse posteriormente mediante disolución o reacción química.

En el presente trabajo se propone la fabricación y caracterización de materiales formados por capas alternadas de material compuesto Al/diamante y espuma de aluminio. Las conductividades térmicas registradas alcanzaron 435W/mK y se discuten mediante modelos que consideran un sistema de capas alternadas semi-infinitas de material compuesto y espuma metálica. Además, se registraron valores de potencia disipada en condiciones de trabajo de hasta 65% superiores a espumas de aluminio convencionales.

## Multicomponent materials for thermal dissipation with alternating Al foam structures and Al/D composite material

### ABSTRACT

#### Keywords:

Metal foam

Metal-diamond composite

Thermal conductivity

Power dissipation

The increasing advances in the electronics industry, which operates with increasingly powerful systems and with greater performances, needs the development of new materials able to dissipate the high amount of heat they generate and that, over 50% of the occasions, is the source of catastrophic failures. The two major approaches in the design and manufacture of heat sinking materials lie in what are called active dissipators and passive dissipators. The last advances in passive dissipation come from Al/diamond composites, which exhibit high thermal properties that can be modulated through the manipulation of interfaces. On the other hand, interconnected pore metal foams have been widely studied because of their active dissipation properties and potentiality as electronic heat sinks. These foams can be designed and manufactured using the well-known replication method. This method produces a composite material consisting of a matrix and inclusions of such a nature that they can be subsequently eliminated by dissolution or chemical reaction.

In the present work we propose the manufacture and characterization of materials formed by alternating layers of Al/Diamond and aluminium foam. Recorded thermal conductivities reached 435W/mK and are discussed by models that consider a semi-infinite alternating layered system of composite material and metal foam. In addition, power dissipation densities were recorded under working conditions and values up to 65% higher than conventional aluminium foams were registered.

## 1 Introducción

Debido a los recientes avances en el sector de la electrónica, que requiere de sistemas cada vez más potentes, con una miniaturización de sus componentes y un aumento de su vida útil, muchos campos de investigación se han focalizado en el diseño de nuevos materiales que cumplan dichas condiciones [1]. Estos materiales deben proporcionar una baja densidad, conductividades térmicas aceptables y alta disipación de calor. En las últimas dos décadas, la atención de los investigadores se centró en el estudio de materiales compuestos metal-diamante. El diamante monocristalino (D) presenta la mayor conductividad térmica (CT) isótropa conocida (hasta 2200W/mK a temperatura ambiente) y con un bajo coeficiente de expansión térmica [2]. Sus atractivas propiedades han hecho que éste se utilice como refuerzo en materiales compuestos de matriz metálica (con conductividades térmicas de hasta 670W/mK con matriz aluminio) Estos materiales fueron considerados potenciales disipadores e intercambiadores de calor en la electrónica moderna. Sin embargo, numerosos estudios verificaron que las propiedades térmicas de los materiales compuestos metal-diamante no sólo dependían de las propiedades de cada fase, sino también de la conductancia térmica interfacial del sistema [3-4]. Estos materiales proporcionaban CTs variables cuando se modificaba la interfase entre el metal y el refuerzo. Monje et al. [5] estableció que la CT del sistema Al/D aumentaba significativamente cuando se alcanzaba un espesor óptimo de  $Al_4C_3$  generado en la interfase.

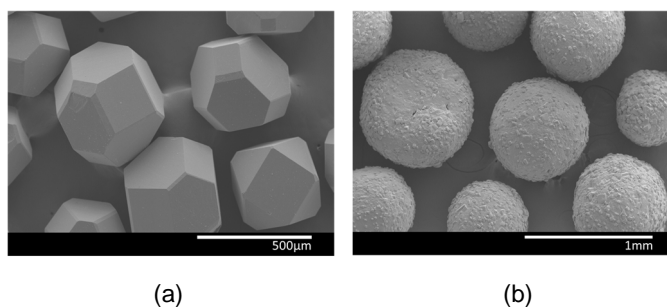
En los últimos años, numerosos trabajos propusieron el uso de espumas metálicas (donde se produce la transferencia de calor mediante mecanismo de conducción-convección) como alternativa a los materiales compuestos (donde la transferencia de calor ocurre por un mecanismo de conducción y requiere de otros dispositivos para eliminarlo por convección forzada) [6,7]. La baja densidad, buena CT, fácil fabricación y bajo coste permite considerar a estos materiales como excelentes candidatos para el control térmico. Sin embargo, se pueden encontrar pocos estudios en bibliografía donde se introducen nuevas fases a los materiales anteriormente mencionados con el fin de mejorar sus propiedades térmicas. Molina-Jordá [8] diseñó un nuevo concepto de material espumado que consistía en una estructura porosa de magnesio con inclusiones de diamante, registrando conductividades térmicas de hasta 82 W/mK. Maiorano et al. [9] presentaron y caracterizaron nuevos diseños de espumas de composite de matriz aluminio con inclusiones térmicas de base de carbono. Los materiales contenían copos de grafito (Gf) distribuidos según dos microestructuras diferentes: i) espumas de aluminio con una distribución homogénea de Gf y ii) capas alternas de Gf y espumas de aluminio. Los materiales proporcionaron CTs de hasta 290W/mK y potencias disipadas de hasta 325% superiores a las espumas de aluminio convencionales.

Atendiendo a las nuevas necesidades de la industria y ante los nuevos materiales presentados para disipación térmica activa, el presente trabajo expone un nuevo diseño, fabricación y caracterización de materiales multicomponente formados por capas alternas de espuma de aluminio y material compuesto aluminio-diamante de conductividad térmica ajustable.

## 2 Procedimiento experimental

### 2.1 Fabricación de los materiales

Para la matriz metálica se empleó aluminio de alta pureza (99.999 % en peso) suministrado por Alfa Aesar (GmbH & Co KG- Karlsruhe, Alemania). Por otro lado, se utilizaron dos tipos de partículas: diamante de calidad ISD1700 40-50 mesh de Ilijin Diamond (Corea), y cloruro de sodio de grado analítico (99 % en peso) suministrado por Panreac Química S.L.U (Barcelona, España). Estas últimas se tamizaron seleccionándose fracciones de entre 500-700  $\mu\text{m}$  para preparar las preformas. La morfología de las mismas puede observarse en las micrografías obtenidas por microscopía óptica de barrido (SEM) presentadas en la Figura 1.



**Figura 1.** Micrografías SEM de partículas de: (a) diamante ISD1700 (300-400  $\mu\text{m}$ ) y (b) cloruro sódico (500-700  $\mu\text{m}$ ).

Se prepararon tres tipos de preformas según la naturaleza de las partículas y su distribución a lo largo de las mismas: i) preformas D, compuestas por un compactado de partículas de diamante, ii) preformas A, formadas por partículas de cloruro de sodio, y iii) preformas M, compuestas por capas alternas de diamante y cloruro sódico. De las preformas D derivan los componentes llamados materiales compuestos de matriz aluminio con refuerzo diamante. Por el contrario, de las preformas A derivan componentes que consisten en estructuras de poro interconectado de aluminio obtenidas por el conocido método de replicación [10]. Los materiales multicomponente que derivan de las preformas M también se fabricaron por el método de replicación siguiendo una microestructura de capas basada en [9]. El empaquetado de partículas se llevó a cabo compactando manualmente con un pistón capas alternas que contenían las cantidades adecuadas de diamante y NaCl en moldes de grafito rectangular de dimensiones de 10x10x50 mm previamente recubiertos con nitruro de boro (ZYP Coatings Inc., Oak Ridge, USA). La parte superior del compactado se selló con papel de alumina. Sobre éste se colocó una pieza de aluminio y toda la configuración fue introducida en una cámara de infiltración. Las preformas se inyectaron con aluminio líquido mediante la técnica de infiltración por presión de gas [11,12]. Para ello, se aplicó vacío en el interior de la cámara hasta alcanzar los 0.2mbar y se llevó la temperatura hasta 760°C con una rampa de calentamiento de 4°C/min. A continuación, se cerró el vacío y se aplicó una presión de gas Ar de 9.5bar.

De acuerdo con el trabajo de Monje et al. [5], se conoce que existen ciertas condiciones de fabricación óptimas en las que la temperatura de infiltración y el tiempo de contacto entre el aluminio líquido y las partículas de diamante tienen un efecto positivo sobre la CT resultante del material. Por ese motivo, se fabricaron diferentes muestras variando las siguientes condiciones de procesado: después de mantener un tiempo de



contacto (tc) de 0, 15 y 45 minutos entre el metal líquido y la preforma, la cámara se enfrió permitiendo una solidificación rápida y direccional de la muestra. El efecto del tiempo de contacto sobre la CT de los materiales fabricados en el presente trabajo se desarrollará en una de las siguientes secciones. Posteriormente, el sólido fue mecanizado para extraer el metal sobrante y las muestras procedentes de las preformas A y M que contenían partículas de NaCl se infiltraron con agua a temperatura ambiente para eliminarlas por disolución, de acuerdo con el proceso de dos etapas detallado en [9].

## 2.2 Caracterización y modelización de los materiales

### 2.2.1 Microestructura e interfase

Puesto que los materiales que contienen diamante no se pueden cortar ni pulir, los componentes Al/D y multicomponentes se prepararon para una caracterización microestructural sometiendo las muestras a un tratamiento electroquímico con el fin de eliminar el aluminio circundante y conservar los carburos generados en la interfase [13,14]. Las microestructuras se observaron bajo microscopía óptica (Olympus PME-3) y la morfología de la interfase se analizó mediante microscopía electrónica de barrido (SEM-Hitachi S3000 N).

### 2.2.2 Conductividad térmica

La conductividad térmica de los materiales se midió mediante un dispositivo basado en una técnica de estado estacionario según se describió previamente en [9,15]. Para estimar de forma analítica la conductividad térmica, deben calcularse previamente las CTs de cada componente presente en los materiales multicomponente. Para ello, se utilizaron los distintos modelos teóricos que se exponen a continuación.

La conductividad térmica del componente Al/D se estimó con el modelo (DEM) según la ecuación

$$(1 - V_p) = \frac{(K_p^{eff}/K_m) - (K_c/K_m)}{(K_p^{eff}/K_m) - 1} \cdot \left(\frac{K_m}{K_c}\right)^{1/3} \quad (1)$$

donde  $V_p$  es la fracción de volumen de la inclusión,  $K_p^{eff}$  su conductividad térmica efectiva y  $K_m$  y  $K_c$  las conductividades térmicas del metal y del composite, respectivamente. Cuando se conoce  $K_p^{eff}$ , la conductancia térmica interfacial aluminio-diamante puede calcularse mediante la siguiente ecuación:

$$K_p^{eff} = \frac{K_p}{1 + (K_p/r \cdot h)} \quad (2)$$

donde  $r$  es el radio promedio de las inclusiones y  $K_p$  su conductividad térmica intrínseca.

Así mismo, la conductividad térmica de los componentes espumados fue obtenida aplicando el mismo modelo cuando se considerando las inclusiones como poros que poseen conductividad térmica intrínseca nula. De este modo, la ecuación (1) queda expresada como

$$K_e = K_m \cdot (1 - V_p)^n \quad (3)$$

donde  $K_e$  es la conductividad térmica de la espuma de Al,  $K_m$  la conductividad térmica del metal (considerada 237W/mK para aluminio 99.999% en peso),  $V_p$  se refiere a la fracción de volumen de poros en la espuma y  $n$  es un parámetro geométrico

considerado igual a 3/2 para poros de geometría esférica [9]. Una vez conocidas las conductividades térmicas de cada componente (material compuesto y espuma), la conductividad térmica del material multicomponente se puede estimar mediante la aproximación de Maxwell [16], la cual idealiza una microestructura de capas alternadas como un sistema de resistencias térmicas en paralelo:

$$K_c^L = K_c \cdot V_c + (1 - V_c) \cdot K_e \quad (4)$$

donde  $K_c^L$  es la conductividad térmica longitudinal del material multicomponente y  $V_c$  la fracción de volumen de composite Al/D.

### 2.2.3 Potencia disipada

Las medidas de potencia disipada se realizaron siguiendo la configuración propuesta en [8,9]. En este dispositivo, se fuerza un flujo de aire a pasar a través de la muestra, la cual se encuentra en contacto con una superficie caliente para que el aire pueda tomar parte del calor transferido al material por conducción para luego eliminarlo por convección forzada. La base de la muestra se encuentra en contacto con un bloque de latón calentado a 80°C y conectado a dos termopares,  $T_1$  y  $T_2$ . En el extremo opuesto de la muestra se imponen flujos de aire a temperatura ambiente de 1 a 15 l/min. El gradiente térmico en el latón se obtuvo por diferencia de las dos temperaturas de  $T_2$  y  $T_1$  (establecido el más cercano a la muestra a 80°C). Este gradiente puede relacionarse con la potencia disipada  $P$  (W/m<sup>2</sup>) mediante la siguiente ecuación:

$$P = \frac{K_{ref} \cdot (T_2 - T_1)}{dx} \quad (5)$$

donde  $K_{ref}$  es la conductividad térmica del material de referencia (en el presente caso,  $K_{ref}$  para latón 99.99% en peso igual a 109 W/mK),  $T_1$  y  $T_2$  son las temperaturas medidas en el bloque de latón y  $dx$  es la distancia entre ambos termopares.

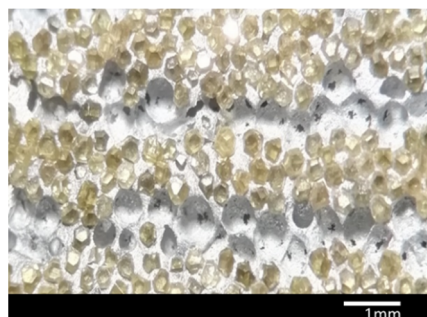
## 3 Resultados

### 3.1 Microestructura e interfase

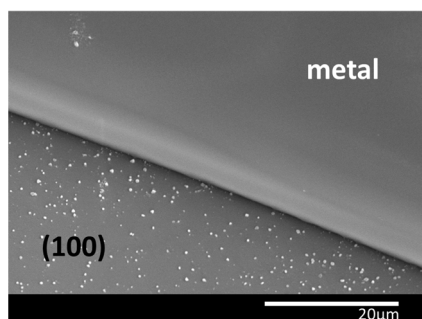
La Figura 2 muestra las micrografías SEM de la microestructura presente en el material M-4 (Figura 2a) y el efecto del tiempo de contacto Al líquido/D en la interfase  $Al_4C_3$  generada (Figura 2b-d). Éstas muestran la reactividad del sistema Al/D, que se define claramente por la evolución de los cristales crecidos en la interfase a medida que aumenta el tiempo de contacto entre las partículas de diamante y el aluminio líquido. Las caras de diamante {100} presentan mayor reactividad que las caras {111}. Los hallazgos en estudios anteriores establecieron que la contribución al transporte de calor es mejor en los contactos interfaciales de diamante-aluminio enriquecido con carbono disuelto que en el de diamante-carburo  $Al_4C_3$ -aluminio. Cuando los tiempos de contacto son despreciables ( $t_c=0$  min), casi exclusivamente las caras {100} están cubiertas por el producto cristalino de tamaño pequeño. Cuando  $t_c=15$  min, se alcanzan las condiciones interfaciales óptimas y ambas caras cristalinas del diamante se cubren con  $Al_4C_3$ . Mientras que las caras {100} aparecen totalmente cubiertas con cristales que disminuyen la contribución al transporte de calor, los átomos de carbono de las caras {111} se disuelven parcialmente en el aluminio. El área de contacto interfacial entre el diamante y el aluminio con



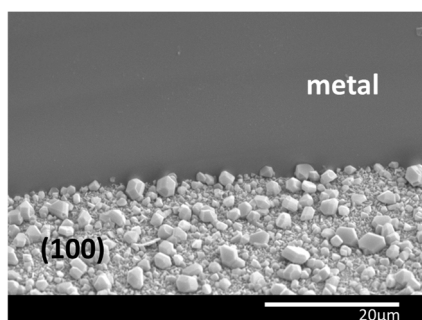
carbono disuelto contribuye a un mejor transporte de calor. Cuando se incrementan los tiempos de contacto, ambas caras están totalmente cubiertas por el producto cristalino y no se observan regiones libres de carburos. Como consecuencia, no se generan áreas de contacto entre el diamante y el aluminio con carbono disuelto y el transporte de calor a través de la interfase se ve limitado.



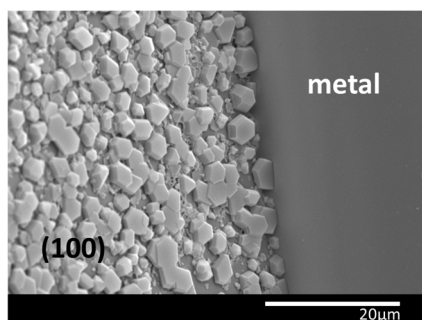
(a)



(b)



(c)



(d)

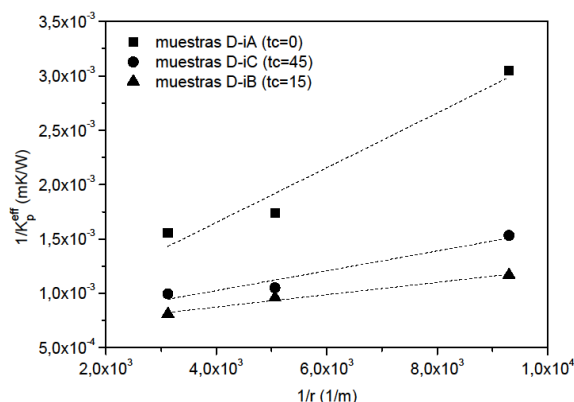
**Figura 2.** Imágenes SEM de (a) capas alternadas presentes en la muestra M-4; y (b-d) producto  $Al_4C_3$  generado en la interfase Al/D a tiempos de contacto 0, 15 y 45 min, respectivamente.

**Tabla 1.** Fracciones de volumen de diamante (VD), de poro (Vp) y de metal (Vm) presentes en todas las muestras fabricadas en este trabajo. Vc:Ve es la proporción composite:espuma y  $K^L$  es la conductividad térmica longitudinal (W/mK) obtenida experimentalmente para cada material. Las muestras D-1, D-2 y D-3 se fabricaron a partir de partículas de diamante con diámetros de 60-80, 40-50 y 20-30 mesh, respectivamente. La notación A implica un procesamiento a  $t_c=0$  min, B a  $t_c=15$  min y C a  $t_c=45$  min.

Material	Código	VD	Vp	Vm	Vc:Ve	$K^L$
Comp. Al/D	D-1A					280
	D-1B	0.61	-	0.39	100:0	534
	D-1C					451
	D-2A					383
	D-2B	0.61	-	0.39	100:0	604
	D-2C					569
	D-3A					440
	D-3B	0.60	-	0.40	100:0	668
	D-3C					589
Comp. Al/poro	A-1	0	0.63	0.37	0:100	52
	A-2	0	0.59	0.41	0:100	60
	A-3	0	0.58	0.42	0:100	63
Multicomp.	M-1A	0.16	0.45	0.39	27:73	137
	M-1B	0.16	0.45	0.39	27:73	196
	M-1C	0.16	0.45	0.39	27:73	183
	M-2B	0.21	0.40	0.39	35:65	244
	M-3B	0.33	0.27	0.40	55:45	351
	M-4B	0.42	0.18	0.40	70:30	435

### 3.2 Conductividad térmica

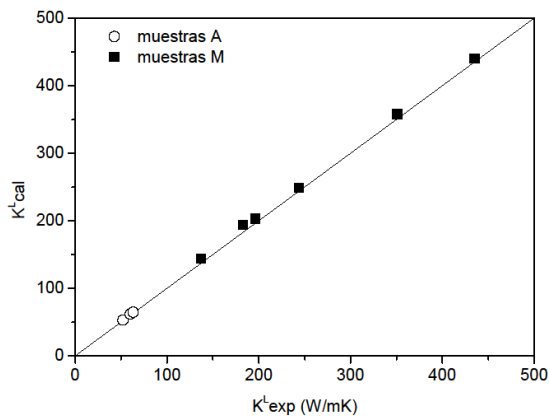
Si analizamos los valores de CT en función del tiempo de contacto para los componentes Al/D (muestras D), se corrobora la tendencia presentada por Moje et. Al [5] (ambos datos experimentales obtenidos a la misma temperatura de infiltración). Como se mencionó anteriormente, cuando  $t_c=15$  min, la interfase Al/D generada contribuye positivamente al transporte de calor a través de ella, lo que induce una CT más elevada. Mediante la aplicación de la ecuación (1) y (2) se obtuvieron las relaciones lineales de la Figura 3, de las cuales se deduce el valor de  $h$  y  $K_p^{eff}$ , necesarias para la estimación de las CTs de los materiales multicomponente.



**Figura 3.** Correlación lineal de  $1/K_p^{eff}$  vs  $1/r$  a partir de la ecuación (2) para los componentes Al/D fabricados bajo distintas condiciones de procesamiento ( $t_c=0, 15$  y  $45$  min).



Los resultados experimentales de CT correspondientes a las muestras fabricadas en el presente trabajo se condensan en la Tabla 1. Según lo esperado, los componentes espumados (muestras A) registraron los valores de CT más bajos. Las CT obtenidas a partir de la ecuación (3) y (4) se correlacionaron con los resultados experimentales en la Figura 4. Aunque el modelo aplicado ofrece conductividades térmicas muy cercanas a las experimentales, se puede observar una ligera sobreestimación con respecto a los valores medidos.



**Figura 4.** Conductividad térmica longitudinal calculada vs. experimental para espumas de aluminio (muestras A) y materiales multicomponente (muestras M).

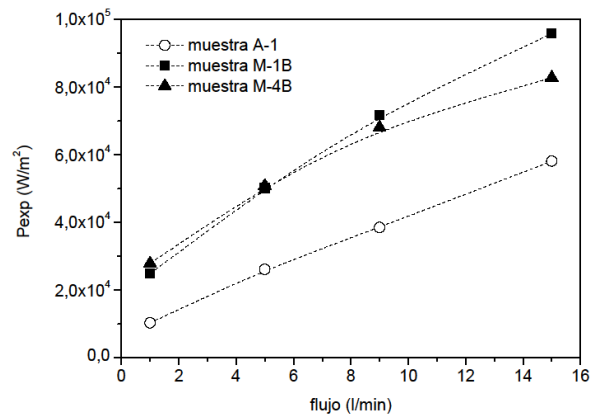
Respecto a las conductividades térmicas de los materiales multicomponente, los resultados experimentales alcanzaron valores de hasta 435 W/mK cuando la fracción de componente Al/D duplica la del componente espumado. Como se esperaba, las conductividades térmicas de las muestras M aumentan con la fracción de volumen de diamante y disminuyen con el contenido de poro. Una vez más, se debe considerar el efecto de las condiciones de procesado en la CT. Las tres muestras fabricadas con la misma composición de fases (muestras M) para tiempos de contacto de 0,15 y 45 min (M-1A, M-1B y M-1C, respectivamente), muestran la misma tendencia que los compuestos de Al/D, donde la CT alcanzó un óptimo a  $t_c=15$  min.

Puede entenderse, por tanto, que los nuevos materiales porosos desarrollados proporcionan conductividades térmicas superiores a las espumas de aluminio convencionales para una fracción de volumen de poro dada.

### 3.3 Potencia disipada

Los resultados de potencia disipada obtenidos para algunos de los materiales fabricados en el presente estudio se exponen en la Figura 5. Los datos experimentales muestran incrementos en los valores de disipación de potencia cuando la fracción de volumen de componente Al/D aumenta mientras que la del componente espumado disminuye. En términos de porcentaje, se encontró que las muestras desarrolladas alcanzaron valores de hasta un 65% superiores a las espumas de Al convencionales. Puede observarse en la figura que a flujos altos (superiores a 5 l/min), la muestra M-1B proporciona valores de potencia disipada superiores a la M-4B a pesar de tener una menor conductividad térmica. Esta fenomenología puede entenderse cualitativamente al tener en cuenta la proporción de

componentes. En la muestra M-1B el componente espumado está en mayor proporción que en la muestra M-4B y este componente es el principal responsable de la disipación térmica en condiciones de convección forzada. El papel del componente Al/D, que es el que tiene mayor conductividad térmica, consiste en el transporte de calor a lo largo de la muestra y su transferencia al componente espumado.



**Figura 5.** Potencia disipada obtenida experimentalmente mediante el dispositivo diseñado en [8,9] en función del flujo de aire impuesto a través de los materiales.

## 4 Conclusiones

En el presente estudio se diseñaron, fabricaron y caracterizaron nuevos materiales multicomponente que consisten en capas alternadas de material compuesto aluminio/diamante y espuma de aluminio. Los materiales registraron conductividades térmicas de hasta 435W//mK cuando la interfase del material compuesto aluminio/diamante se modificó mediante las condiciones de procesado. Por otro lado, la conductividad térmica se estimó analíticamente mediante distintas aproximaciones, obteniéndose valores muy similares a los experimentales. Las potencias disipadas de los materiales multicomponente medidas en condiciones de trabajo alcanzaron valores de hasta un 65% superior que las espumas de aluminio convencionales equivalentes.

## Agradecimientos

Los autores desean agradecer la financiación obtenida del "Ministerio de Ciencia e Innovación" (proyecto MAT2016-77742-C2-2-P).

## Referencias

- [1] P.K.Schelling, L.Shi, K.E.Goodson, *Materials Today*,**8**,6, pág. 30-35 (2005).
- [2] M.Battabyal, O.Beffort, S.Kleiner, S.Vaucher, L.Rohr, *Diamond and Related Materials*, **17**, pág. 1438-42 (2008).
- [3] D.P.H.Hasselmann, L.F.Johnson, *Journal of Composite Materials*,**21**, pág 508-15 (1987).
- [4] W.Yang, K.Peng, L.Zhou, J.Zhu, D.Li, *Computational Materials Science*,**83**, pág. 375-80 (2014).
- [5] I.E.Monje, E.Louis, J.M.Molina, *Composites Part A*,**48**, pág. 9-14 (2013).



- [6] G.Zaragoza, R.Goodall, *International Journal of Heat and Mass Transfer*,**56**, pág. 37–49 (2014).
- [7] S.Mancin, C.Zilio, A.Diani, L.Rossetto, *International Journal of Heat and Mass Transfer*,**62**, pág. 112–123 (2013).
- [8] J.M.Molina-Jordá, *Composites Part A*,**105**, pág. 265-73 (2018).
- [9] L.P.Maiorano, J.M. Molina, *Materials and Design*,**158**, pág. 160-71 (2018).
- [10] Y. Conde, A.Mortensen, *Advanced Engineering Materials*, pág. 849–852 (2008).
- [11] C.García-Cordovilla, E.Louis, J.Narciso, *Acta Materialia*,**47**, pág. 4461-79 (1999).
- [12] J.M.Molina, R.A.Saravanan, R.Arpon, C.García-Cordovilla, E.Louis, J. Narciso, *Acta Materialia*,**50**, pág. 247–57 (2002).
- [13] I.E.Monje, E.Louis, J.M.Molina, *Scripta Materialia*,**66**,17, pág. 789-92 (2012).
- [14] J.M.Molina-Jordá, *Acta Materialia*,**96**, pág.101-10 (2015).
- [15] L.P.Maiorano, J.M.Molina, *Revista AEMAC*, **2**,1, pág. 35-41 (2017).
- [16] J.M.Molina, E.Louis, *Materials Characterization*, **109**, pág. 107–11 (2015).

