研究速報

SPS 成形した Al/SiC 複合材料の熱物性に及ぼす SiC のバイモーダルな粒度分布の影響

水内 潔^{1*}, 井上 漢龍², 上利 泰幸¹, 杉岡 正美¹, 田中 基博¹, 武内 孝¹, 谷 淳一¹,
川原 正和³, 巻野勇喜雄³, 井藤 幹夫⁴

¹ 大阪市立工業研究所, 〒536-8553 大阪市城東区森之宮 1-6-50.

² ワシントン大学材料科学工学科, 〒98195-2120 米国ワシントン州シアトル市.

³ 富士電波工機(株), 〒216-0033 川崎市宮前区宮崎 2-10-9 オーミヤ宮崎台ビル 302 号.

⁴ 大阪大学大学院工学研究科附属原子分子イオン制御理工学センター, 〒565-0871 吹田市山田丘 2-1.

Effect of Bimodal Distribution of SiC Particle Size on Thermal Properties of Al/SiC Composite Fabricated by SPS

Kiyoshi MIZUUCHI^{1*}, Kanryu INOUE², Yasuyuki AGARI¹, Masami SUGIOKA¹, Motohiro TANAKA¹,
Takashi TAKEUCHI¹, Jun-ichi TANI¹, Masakazu KAWAHARA³, Yukio MAKINO³ and Mikio ITO⁴

¹ Osaka Municipal Technical Research Institute, 1-6-50 Morinomiya, Joto-ku, Osaka 536-8553 Japan.

² Materials Science & Engineering, University of Washington, Seattle, WA 98195-2120, USA.

³ Fuji Electronic Industrial Co., Ltd., 2-10-9-302 Miyazaki, Miyamae-ku, Kawasaki 216-0033, Japan.

⁴ Center for Atomic and Molecular Technologies, Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita 565-0871, Japan.

Received January 22, 2013

ABSTRACT

Silicon carbide (SiC)-particle-dispersed-aluminum (Al) matrix composites were fabricated in continuous solid-liquid co-existent state by Spark Plasma Sintering (SPS) process from the mixture of SiC powders, Al powders and Al-5mass% Si alloy powders. As the SiC powders, two kind of powders, monomodal SiC powders of 109.8 μm in diameter and a bimodal SiC powder mixture of 109.8 μm and 14.3 μm in diameter, were used. The microstructures and thermal conductivities of the composites fabricated were examined. These composites were all well consolidated by heating at a temperature range between 798 K and 876 K for 1.56 ks during SPS process. No reaction at the interface between the SiC particle and the Al matrix was observed by scanning electron microscopy for the composites fabricated under the sintering conditions employed in the present study. Although the relative packing density of the monomodal composite decreased from 99.8 % to 95.1 % with increasing SiC volume fraction between 55 % and 65 %, that of the bimodal composite was higher than 97 % in a SiC volume fraction range up to 70 %. The thermal conductivity of the bimodal composite was higher than that of the monomodal composite in a SiC volume fraction range higher than 60 %. The coefficient of thermal expansion of the composites falls in the upper line of Kerner's model, indicating strong bonding between the SiC particle and the Al matrix in the composite.

KEY WORDS

thermal conductivity, spark plasma sintering, aluminum, silicon carbide, composite

1 緒 言

超 LSI の高集積化・高速化に伴い, 小型電子機器の内部発熱による超 LSI チップ自体の誤動作が, 近年深刻な問題となりつつある. 電子機器の温度上昇を抑えるには, 消費電力を小さくすれば良いわけであるが, 実際には, 機器の小型化と高機能化が同時に要求されるため, 結果的に機器の単位体積当たりの発熱密度が増し, 各部の温度上昇を招いている. したがって, 高熱伝導性を有する放熱材料の開発は極めて重要

な課題となりつつある. またこれに加えて, 自動車産業の分野においても, LED ヘッドライトの普及, さらには, ハイブリッド車や電気自動車の動力用モーターの小型高出力化のためにも, 高熱伝導材料の早期開発が強く望まれている.

我々は最近, 高熱伝導性を有する材料として, 現存する材料中最も高い熱伝導率 ($\lambda = 2000 \text{ W/mK}$)^{1,2)} を有するダイヤモンド粒子を, 金属中に分散したダイヤモンド粒子分散型金属基複合材料を放電プラズマ焼結法 (SPS)³⁻⁶⁾ を用いて成形することにより, 放熱性に優れた金属基複合材料の開発を行ってきた⁷⁻¹⁸⁾. また, Al/Diamond 系^{9-11,13,14)}, Al/AlN 系^{15,16)}, および, Al/ α -SiC 系^{17,18)} においては, SPS 成形中に固-液共存状

*Corresponding author. Tel: +81-6-6963-8153;

fax: +81-6-6963-8145.

E-mail address: mizuuchi@omtri.or.jp (K. Mizuuchi).

態を持続させることが、相対密度の向上やAlマトリックス/充填粒子界面密着性の向上に有効に作用することを明らかにしてきた。しかしながら、単一粒子径(モノモーダル)の充填粒子を用いた場合、充填粒子の体積分率が50%を越えると、複合材料の相対密度の減少により熱伝導が低下する傾向が認められている^{9-11,13,14,17,19}。

本研究では、マトリックスとしてAlを、充填粒子として2種類の粒子径を有する α 型炭化ケイ素(α -SiC)をそれぞれ選択し、前報で報告した持続型固-液共存状態を利用したSPS成形法^{14,16,18})を用いて、Al/SiC複合材料を成型し、SiCのバイモーダルな粒度分布が複合材料の相対密度や熱伝導率に及ぼす影響について調べたので報告する。

2 実験方法

出発材料としては、2種類の α 型炭化ケイ素(α -SiC)粉末(GMF-60FH2, 平均粒子径109.8 μm , および, GMF-800H2, 平均粒子径14.3 μm , いずれも大平洋ランダム(株)製)を充填粒子として用いた。また、マトリックス用の出発材料としては、純Al粉末(99.9%, 150 mesh, 三津和化学薬品(株)製), および, Al-5mass%Si合金粉末(平均粒子径70 μm , ヒカリ素材工業(株)製)を用いた。用いた粉末の外観のSEM写真をFig. 1に示す。粒子形状はそれぞれ、SiC粉末が2種類とも塊状、純Al粉末が

涙滴状、そして、Al-5mass%Si合金粉末が球状となっている。

なお、Al-5mass%Si合金粉末の熱伝導率は163 W/mKと低いため、多量の使用は複合材料そのものの熱伝導率を低下させる可能性がある。本研究においてのAl-Si合金粉末の役割は、極少量の液相を含有する固-液共存状態を維持することであるから多量に使用する必要性は認められない。したがって、マトリックス粉末としては、純Al粉末とAl-Si合金粉末を体積比で9:1の割合で混合した混合粉末を用いた。

バイモーダルな粒度分布を有するSiC粉末の混合比は、前報¹⁹)同様、次のように決定した。大粒子と小粒子を混合した2成分粒子充填層の空隙率を混合分率と各粒子を単独で充填した際の空隙率から推定するために、以下の、Furnasモデル式²⁰)が提案されている。このモデルでは、①小粒子は大粒子より充分小さい、②大小粒子の粒子密度が等しい、③大粒子間の空隙を小粒子が埋めると仮定して次式(1)が得られる。

$$\varepsilon = 1 - \frac{1 - \varepsilon_1}{Sv_1} \quad (1)$$

同様に、小粒子間に大粒子が混在すると考えると次式(2)が得られる。

$$\varepsilon = 1 - \frac{1 - \varepsilon_2}{1 - Sv_1 \cdot \varepsilon_2} \quad (2)$$

ここで、

Fig. 1 SEM micrographs of as-received (a) SiC (109.8 μm), (b) SiC (14.3 μm), (c) pure Al and (d) Al-5mass% Si powders, showing the morphology of the powders.

ε_1 : 大粒子を単独で充填した際の空隙率,
 ε_2 : 小粒子を単独で充填した際の空隙率,
 Sv_1 : 混合粒子中の大粒子の体積分率である.

Furnasは, これらの式(1), (2)で算出した2つの空隙率のうち, 大きな方を用いることを提案している. 本研究で用いた2種類のSiC粉末をメスシリンダーに充填し, 100回のタッピングを行った際の空隙率は, それぞれ, $\varepsilon_1 = 43.3\%$, $\varepsilon_2 = 56.6\%$ であった. これらの値を用いて混合粉末の空隙率を計算した結果をFig. 2に示す. 大粒子の混合分率75.11 vol% (小粒子の混合分率24.89 vol%)において, 最小の空隙率24.51%が得られる. 以上より, 本研究では, 2種類のSiC粉末粒子の混合分率を, 大粒子(直径109.8 μm): 小粒子(直径14.3 μm)=75.1:24.9とした.

複合材料の成形は以下の様に行った. パイモータル複合材料の作製用には, 前述の配合比で混合した2種類のSiC粉末の混合体(粒子径109.8 μm + 粒子径14.3 μm), 純Al粉末, および, Al-5mass%Si合金粉末を, SiC体積分率が全体の50~70 vol%となるような配合比で混合した混合粉末を用意した. モノモータル複合材料の作製用には, 大粒子径のSiC粉末(粒子径109.8 μm), 純Al粉末, および, Al-5mass%Si合金粉末を, SiC体積分率が全体の40~65 vol%となるような配合比で混合した混合粉末を用意した.

これらの混合粉末を超硬製ダイセット中に充填し, 2 Paの真空中で, 加圧力80~300 MPa, 室温から798 Kまでの昇温速度1.08 K/s, 798 K~876 Kの保持過程での加熱速度0.05 K/s, 保持時間1.56 ksの条件でSPS成形し, 直径10 mm×厚さ約2 mmのディスク状試料を作製した. 測温は, ダイ内壁より5 mmの位置のダイ温度をK型熱電対で測定することにより行なった. なお, 798 Kから876 Kまでを昇温速度0.05 K/sで低速加

熱するのは, 前報^{10,11,14)}で報告している通り, 成形中にAlマトリックスの固-液共存状態を持続させ, 材料中のポアを効率良く充填するためである. 作製されたディスクについて, 相対密度の測定, SEM (JSM-6460LA)による組織観察, 及び, レーザーフラッシュ法 (ULVAC-RICO Laser PIT)による熱伝導率の測定, 及び, 熱膨張測定装置 (Rigaku TMA8310)による熱膨張係数の測定を行った. なお相対密度は, アルキメデス法 (JIS (K7112)のC法(浮沈法))に基づいて複合材料の密度をまず測定し, その値を, ポロシティが無いと仮定して複合則により計算した理論密度の値で除することにより算出した.

3 結果および考察

3.1 組織と生成相

Al-65 vol% SiC複合材料のSEMによる組織観察結果をFig. 3に示す. Fig. 3 (a), (b)に示すように, モノモータル複合材料, パイモータル複合材料, 共に濃灰色のSiC粒子が淡灰色のAl中に分散した組織を呈している. Fig. 3 (c), (d)は, モノモータル複合材料, および, パイモータル複合材料のAl/SiC大粒子界面の拡大写真を示している. モノモータル複合材料の場合, Al/SiC大粒子界面に多数のポアの残存が認められる. これに対し, パイモータル複合材料の場合, SiC大粒子間隙にSiC小粒子が充填され, ポアの残存は, モノモータル複合材料の場合より少なくなっている. Al-55 vol% SiC複合材料, および, Al-60 vol% SiC複合材料においても同様の傾向が認められた. これは, パイモータルな粒度分布を有するSiC粉末粒子を用いた効果と思われる. なお, SEM観察の範囲内では, Al/SiC界面において, Al_4C_3 の生成によると思われる反応層は認められなかった. 本研究で用いた, 持続型固-液共存状態を利用したSPS成形法^{10,11,14)}は, 固相率が極めて高い固液共存状態での成形であり, かつ, 液相の存在位置が時々刻々移動するため, Al/SiC界面反応の生じにくい成形方法と考えられる. しかしながら, ナノサイズの Al_4C_3 粒子がAl/SiC界面に微量に生成している場合, SEMやX線回折ではとらえにくいと思われる. したがって, Al_4C_3 の存在の確認には, TEMとSTEM-EDXを併用した詳細な観察が必要と考えられる.

3.2 SiC粒子体積分率と複合材料の相対密度との関係

Fig. 4は, SPS成形したAl/SiC複合材料の相対密度のSiC粒子体積分率との関係を示している. モノモータル複合材料の場合, SiC粒子体積分率が40~55%の範囲内においては, 99%を越える相対密度が得られた. しかしながら, SiC粒子体積分率が55%を越えると, 複合材料の相対密度はSiC粒子体積分率の増大と共に減少し, SiC粒子体積分率60%で相対密度は98.9%に, SiC粒子体積分率65%では相対密度は95.1%にまで, それぞれ低下した. 一方, パイモータル複合材料の場合は, SiC粒子体積分率60%まで, 相対密度は99.5%以上を維持し, SiC粒子体積分率70%でも相対密度は97.1%である. 前述の組織観察結果にも表れているように, SiC粉末のパイモータルな粒度分布が複合材料の相対密度の向上に寄与していると考えられる.

Fig. 2 Change in the porosity of the SiC powder mixture composed of large sized particles (109.8 μm) and small sized particles (14.3 μm) tapped a hundred times as a function of the volume fraction of large SiC particles in the SiC powder mixture.

Fig. 3 SEM micrographs of Al-65 vol.% SiC composites fabricated by spark plasma sintering (SPS). Monomodal (a), (c) and bimodal (b), (d).

Fig. 4 Changes in relative packing density of SiC particle dispersed Al matrix composite fabricated by spark plasma sintering as a function of the volume fraction of SiC in the composite.

3.3 熱伝導率

Al/SiC 複合材料の熱伝導率と SiC 粒子体積分率との関係を Fig. 5 に示す。Fig. 5 中には、熱伝導率の実測値を○、および、●プロットで示した。モノモーダル複合材料においては、SiC 粒子体積分率 40～50 vol% の範囲内において、複合材料の熱伝導率は、SiC 粒子体積分率の増大と共に単調に増加し、SiC 粒子体積分率 50 vol% において 252 W/mK の熱伝導率が得られる。しかしながら、SiC 粒子体積分率が 55 vol% を越えると、複合材料の熱伝導率は、SiC 粒子体積分率の増大と共に急激に低下し、SiC 粒子体積分率 60 vol% において 208 W/mK に、SiC 粒子体積分率 65 vol% において 171 W/mK にまで減少する。一方、バイモーダル複合材料の場合は、熱伝導率は、SiC 粒子体積分率 55～70 vol% の範囲において、SiC 粒子体積分率の増大と共に緩やかに低下するが、Al-70 vol% SiC 複合材料においても 212 W/mK の熱伝導率を示した。これも、SiC 粉末のバイモーダルな粒度分布の影響と思われる。また、今回の熱伝導率測定結果は、SiC 粒子体積分率 55 vol% まではモノモーダル複合材料の方が熱伝導率が高く、SiC 粒子体積分率 60 vol% 以上ではバイモーダル複合材料の方が熱伝導率が高いことを示している。したがって今回の結果から、Al/SiC 複合

Fig. 5 Change in thermal conductivity of SiC particle dispersed Al matrix composite fabricated by spark plasma sintering (SPS) as a function of the volume fraction of SiC particles in the composite.

材料については、モノモーダルとバイモーダルを使い分けることにより、SiC粒子体積分率40～70 vol%の範囲において、210 W/mK以上の熱伝導率が維持できることが示唆される。なお、前報¹⁹⁾のAl/ダイヤモンド系バイモーダル複合材料では、ダイヤモンド粒子体積分率55～65%の範囲で、ダイヤモンド粒子体積分率の増大と共に、熱伝導率が明らかに増大する傾向がみられたが、本研究のAl/SiCバイモーダル複合材料では、SiC粒子体積分率55%以上の範囲では、熱伝導率は粒子体積分率の増大と共に若干低下していく傾向が見られた。これは、用いた小粒子径充填材の直径が、ダイヤモンドの場合の34.8 μmに対して、SiCの場合14.3 μmと小さいことが一つの要因と考えられる。類似の傾向は、Chuら²¹⁾によっても報告されている。

3.4 熱膨張係数

Fig. 6にAl/SiC複合材料の熱膨張係数の理論値と実測値を合わせて示した。粒子分散型複合材料の熱膨張係数の理論式としては、Turner²²⁾のモデルとKerner²³⁾のモデルの2種類が提唱されている。このうち、Kernerのモデルは、分散粒子とマトリックスの界面で生ずるせん断応力の影響を考慮しているためより広く用いられている。本研究においても、Kernerのモデルを用いて理論計算値と実測値の比較を行った。本研究で作製したAl/SiC複合材料の熱膨張係数の実測値は、モノモーダル複合材料の場合、Al-40 vol% SiCにおいて 14.3×10^{-6} 、Al-50 vol% SiCにおいて 12.5×10^{-6} であった。また、バイモーダル複合材料の場合、Al-65 vol% SiCにおいて 9.88×10^{-6} 、Al-70 vol% SiCにおいて 9.39×10^{-6} であった。これらの実測値は、熱膨張係数の大きいAlをマトリックスとし、熱膨張係数の小さいSiCを分散粒子として計算した、KernerのUpper line (上限

Fig. 6 Comparison of coefficients of the thermal expansion theoretically-predicted for Al and SiC composite and experimentally-obtained for Al and Si composite containing 40, 50, 65 and 70 vol.% SiC particles. Kerner's upper line is obtained by considering Al as the matrix of the composite, whereas its lower line is obtained by considering the dispersed SiC as the matrix. For comparison, a theoretically-obtained curve using Turner's model is also shown.

の曲線)で示される理論値にほぼ一致した。この結果は、本研究で作製したAl/SiC複合材料の粒子/マトリックス界面の密着性が良好であることを示している。

4 結 論

持続型固-液共存状態を利用した放電プラズマ焼結法 (SPS)により、炭化ケイ素 (SiC) 粒子分散型Al基複合材料を作製し、SiCのバイモーダルな粒度分布が複合材料の相対密度や熱伝導率に及ぼす影響について調べ、以下のことを明らかにした。

- (1) SiC粉末、純Al粉末、及び、Al-5 mass% Si粉末の混合粉末は、SPSにより2 Paの真空中で、加圧力80～300 MPa、室温から813 Kまでの昇温速度1.08 K/s、813 Kから878 Kまでの昇温速度0.05 K/s、保持時間1.56 ksの条件で緻密化できる。
- (2) SEM観察の範囲内ではAl/SiC界面反応層の形成は観察されなかった。
- (3) 複合材料中のSiC粒子体積分率の増大と共に、複合材料の相対密度は減少する傾向がみられるが、モノモーダル複合材料では、SiC粒子体積分率65 vol%において相対密度は95.1%まで低下するのに対し、バイモーダル複合材料の場合、SiC粒子体積分率70 vol%においても97%以上の相対密度を維持できた。
- (4) モノモーダル複合材料では、SiC粒子体積分率が55 vol%

- をを超えると熱伝導率は急激に減少し、SiC粒子体積分率が65 vol%においては熱伝導率は171 W/mKまで低下する。一方、バイモーダル複合材料では、SiC粒子体積分率が70 vol%においても212 W/mKの熱伝導率を維持できた。
- (5) 熱伝導率に関しては、SiCのバイモーダルな粒度分布は、複合材料中のSiC粒子体積分率が60 vol%以上で有効であることが示唆された。
- (6) Al/SiC複合材料の熱膨張係数の実測値はKernerモデルの理論式のUpper lineにほぼ一致し、Al/SiC界面の密着性が良好であることが示唆された。

文 献

- Metals Handbook, Vol. 2-Properties and Selection: Nonferrous Alloys and Special-Purpose Mater., ASM Inter., 10th Ed., (1990)1119-1124.
- ASM Engineered Mater. Reference Book, 2nd Edition, M. Baucchio, Ed., ASM Inter., Mater. Park, OH, (1994)360-369.
- M. Ito, T. Nagira, M. Katsuyama: "Microstructural control and Synthesis route for enhancing performance of sintered thermoelectric oxide polycrystals via chemical solution process", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 57(2010)224-231.
- N. Tamari, T. Tanaka, K. Tanaka, I. Kondo, M. Kawahara, M. Tokita: "Effect of spark plasma sintering on densification and mechanical properties of silicon carbide", J. Ceram. Soc. Jpn., 103(1995)12-17.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, K. Hamada, M. Sugioka, M. Itami, M. Fukusumi, M. Kawahara: "Processing of TiNi SMA Fiber Reinforced AZ31 Mg Alloy Matrix Composite by Pulsed Current Hot Pressing", Mater. Sci. Eng. A, 367(2004)343-349.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, M. Sugioka, M. Itami, M. Kawahara, I. Yamauchi: "Microstructure and Mechanical Properties of Boron Fiber reinforced Ti matrix Composites Produced by Pulsed Current Hot Pressing (PCHP)", J. Japan Inst., Metals, 68(2004)1083-1085.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, S. Yamada, M. Sugioka, M. Itami, M. Kawahara, Y. Makino: "Consolidation and Thermal Conductivity of Diamond Particle Dispersed Copper Matrix Composites Produced by Spark Plasma Sintering (SPS)", J. Japan Inst. Metals, 71(2007)1066-1069.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, S. Yamada, M. Tanaka, M. Sugioka, T. Takeuchi, J. Tani, M. Kawahara, J.-h. Lee, Y. Makino: "Thermal Properties of Diamond Particle-Dispersed Cu-Matrix-Composites Fabricated by Spark Plasma Sintering (SPS)", Mater. Sci. Forum, 638-642(2010)2115-2120.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, Y. Morisada, M. Sugioka, M. Itami, I. Kawafune, M. Kawahara, Y. Makino: "Thermal Conductivity of Diamond Particle Dispersed Aluminum Matrix Composites Produced in Solid-Liquid Co-Existent State by SPS", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 55(2008)6-100.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, Y. Morisada, M. Sugioka, M. Tanaka, T. Takeuchi, J. Tani, M. Kawahara, Y. Makino: "Thermal Properties of Diamond Particle Dispersed Aluminum Matrix Composites Fabricated in Continuous Solid-Liquid Co-Existent State by SPS", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 56(2009)438-443.
- K. Mizuuchi, M. Kawahara, Y. Makino: "Densification and Development of Synthesis Route for Enhancing Performance of Heat Dissipative Metal Matrix Composites in Continuous Solid-Liquid Co-Existent State", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 58(2011)63-70.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, Y. Morisada, M. Sugioka, M. Tanaka, T. Takeuchi, M. Kawahara, Y. Makino: "Microstructure and Thermal Conductivity of Ag/Diamond Composites Fabricated in Solid-Liquid Co-Existent State by SPS", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 56(2009)768-774.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, Y. Morisada, M. Sugioka, M. Tanaka, T. Takeuchi, M. Kawahara, Y. Makino: "Thermal conductivity of diamond Particle dispersed aluminum matrix composites fabricated in solid-liquid co-existent state by SPS", Compos. Part B: Eng., 42(2011)1029-1034.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, Y. Morisada, M. Sugioka, M. Tanaka, T. Takeuchi, J. Tani, M. Kawahara, Y. Makino: "Processing of diamond particle dispersed aluminum matrix composites in continuous solid-liquid co-existent state by SPS and their thermal properties", Compos. Part B: Eng., 42(2011) 825-831.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, T. Nagaoka, Y. Morisada, M. Sugioka, M. Tanaka, T. Takeuchi, J. Tani, M. Kawahara, Y. Makino, Mikio Ito: "Thermal Properties of Al/AlN Composites Fabricated in Continuous Solid-Liquid Co-Existent State by SPS", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 58 (2011)155-159.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, T. Nagaoka, Y. Morisada, M. Sugioka, M. Tanaka, T. Takeuchi, J. Tani, M. Kawahara, Y. Makino, M. Ito: "Processing and thermal properties of Al/AlN composites in continuous solid-liquid co-existent state by spark plasma sintering", Compos. Part B: Eng., 43(2012)1557-1563.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, T. Nagaoka, Y. Morisada, M. Sugioka, M. Tanaka, T. Takeuchi, J. Tani, M. Kawahara, Y. Makino, M. Ito: "Thermal Properties of Al/SiC Composites Fabricated in Continuous Solid-Liquid Co-Existent State by SPS", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 5(2011)160-164.
- K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, T. Nagaoka, Y. Morisada, M. Sugioka, M. Tanaka, T. Takeuchi, J. Tani, M. Kawahara, Y. Makino, M. Ito: "Processing and thermal properties of Al/

- SiC composites in continuous solid-liquid co-existent state by spark plasma sintering", *Compos. Part B: Eng.*, **43**(2012)2012-2019.
- 19) K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, M. Sugioka, M. Tanaka, T. Takeuchi, M. Kawahara, Y. Makino, M. Ito: "Effect of Bimodal Diamond Particle Size Distribution on Thermal Conductivity of Al/Diamond Composite Fabricated by SPS", *J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy*, **59**(2012)437-442.
- 20) C.C. Furnas: "Grading Aggregates: I", *Ind. Eng. Chem.*, **23**(1931)1052-1058.
- 21) K. Chu, C. Jia, X. Liang, H. Chen, H. Guo, F. Yin, X. Qu: "Experimental and modeling study of the thermal conductivity of SiCp/Al composites with bimodal size distribution", *J. Mater. Sci.*, **44**(2009)4370-4378.
- 22) P.S. Turner: "Thermal -Expansion Stresses in Reinforced Plastics", *J. Res. NBS.*, **37**(1946)239-250.
- 23) E.H. Kerner: "The Elastic and Thermo-elastic. Properties of Composite Media", *Proc. Phys. Soc.*, **B69**(1956)808-813.