



(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 109054761 A

(43)申请公布日 2018.12.21

(21)申请号 201810909378.1

(22)申请日 2018.08.10

(71)申请人 佛山市中科四维热管理技术有限公司

地址 528300 广东省佛山市顺德区北滘镇  
顺江社区居民委员会兴业路4号加利  
源商贸中心7座801号

(72)发明人 郭全贵 陶则超 刘占军 苏情  
李朋飞

(74)专利代理机构 佛山市名诚专利商标事务所  
(普通合伙) 44293

代理人 熊强强

(51)Int.Cl.

C09K 5/06(2006.01)

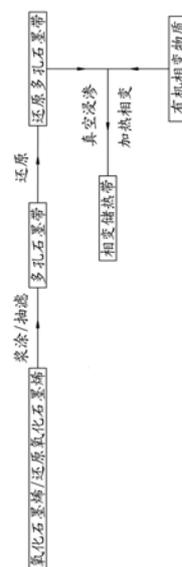
权利要求书1页 说明书5页 附图3页

(54)发明名称

一种相变储热带及其制备方法

(57)摘要

本发明涉及一种相变储热带。它一种相变储热带,包括多孔石墨带和有机相变物质,所述多孔石墨带的重量百分比为5~60%,有机相变物质的重量百分比为40~95%;所述的多孔石墨带,是指以碳石墨材料制成的厚度在0.05~0.3mm之间、体积密度在0.05~0.6g/cm<sup>3</sup>之间的带;所述的有机相变物质是指熔点在10~80℃有机物质。这种相变储热带具有轻质(体积密度为1.0~1.4g/cm<sup>3</sup>)、超薄(厚度在0.05~0.3mm之间)、热导率高(热导率在1~30 W/mK)的优点。



1. 一种相变储热带,其特征在于:包括多孔石墨带和有机相变物质,所述多孔石墨带的重量百分比为5~60%,有机相变物质的重量百分比为40~95%;

所述的多孔石墨带,是指以碳石墨材料制成的厚度在0.05~0.3mm之间、体积密度在0.05~0.6g/cm<sup>3</sup>之间的带;

所述的有机相变物质是指熔点在10~80℃有机物质。

2. 根据权利要求1所述相变储热带,其特征在于:所述碳石墨材料为氧化石墨烯或还原氧化石墨烯。

3. 根据权利要求1所述相变储热带,其特征在于:所述有机物质为烷烃或石蜡或脂肪酸。

4. 一种所述相变储热带的制备方法,包括多孔石墨带和有机相变物质,所述多孔石墨带的重量百分比为5~60%,有机相变物质的重量百分比为40~95%,其特征在于:包括如下步骤:

步骤一,多孔石墨带的制备:以氧化石墨烯为原料,通过浆涂或抽滤方式,制成厚度在0.05~0.3mm之间的氧化石墨烯带,所述氧化石墨烯带体积密度在0.05~0.6g/cm<sup>3</sup>之间,

步骤二,多孔石墨带的还原处理:将步骤一所得的氧化石墨烯带移除大部分氧原子,修复微观结构中的石墨面网,得到石墨质带;

步骤三,有机相变物质浸渗至多孔石墨带中:通过液相浸渗的方式将有机相变物质填充至步骤二所得的石墨质带中,形成相变储热带。

5. 根据权利要求4所述相变储热带的制备方法,其特征在于:所述浆涂方式是指将氧化石墨烯浆料涂覆或刮涂在衬底上形成厚度在0.05~0.3mm之间的带。

6. 根据权利要求4所述相变储热带的制备方法,其特征在于:所述抽滤方式是指以氧化石墨烯浆料和水溶液为原料,通过抽滤的方式,将氧化石墨烯颗粒沉积在滤网或滤布上,形成厚度在0.05~0.3mm之间的带,并从滤网或滤布上转移下来。

7. 根据权利要求4所述相变储热带的制备方法,其特征在于:所述步骤二中的还原处理,是指用高温设备处理步骤一中的多孔石墨带,在高温环境中移除多孔石墨带的氧原子形成石墨质带,还原温度为600~2000℃。

8. 根据权利要求4所述相变储热带的制备方法,其特征在于:所述步骤二中的还原处理,是指用强还原性物质移除步骤一中的多孔石墨带中的氧原子形成石墨质带,强还原性物质为水合肼或亚硫酸氢钠。

9. 根据权利要求4所述相变储热带的制备方法,其特征在于:所述步骤三的液相浸渗过程,是指将有机相变物质加热至其熔点以上形成液态,并在常压、负压或正压环境中,将液态相变物质填充在步骤二中的石墨质带中。

10. 根据权利要求9所述相变储热带的制备方法,其特征在于:所述步骤三中的液相浸渗的浸渗温度为60~200℃,浸渗压力为10Kpa~3Mpa。

## 一种相变储热带及其制备方法

### 技术领域

[0001] 本发明涉及一种相变储热带及其制备方法。

### 背景技术

[0002] 随着大功率电子器件和集成电路的蓬勃发展,热管理成为电子行业中的一个共性问题。以发光二极管(LED)灯具为例,芯片处的温度与灯具的使用寿命直接相关。芯片处的温度每升高 $10^{\circ}\text{C}$ ,则LED灯具的使用寿命下降50%。再以航天飞行器所搭载的CCD相机为例,温度的升高不仅会影响CCD相机的处理速度,还会产生热应力畸变严重影响成像质量和精度。从热管理的角度来看,一个完整的电子器件可以分为三部分:即功率器件(热源)、封装层、热沉(散热器)。所谓热管理,则是要用各种有效的工程技术手段将功率器件产生的热量转移至散热器之外。在这个过程中,性能优异的热管理材料是实现有效热管理的物质基础。在形态众多、功能各异的热管理材料中,高导热材料占据着重要的地位。从功率的器件的封装、热沉到散热器,都希望材料具有较高的热导率,形成一个连续的导热路径。进而将热量从功率器件通过热传导的方式转移到散热器上。

[0003] 封装层到热沉(散热器)之间的连接方式可以分为两种。一种是机械装配,这种方式的特点是热沉与散热器之间的距离很近,用螺栓等机械方式即可将封装层与散热器紧密装配。LED、消费电子产品(手机、平板电脑)等体积紧凑的电子产品多用这种连接方式。这种连接方式是刚性的固体界面结合,在界面区域往往存在数量可观的微观间隙。在实际中还需填充导热膏、导热垫片、导热胶等界面导热材料。但必须指出的是,这种界面导热材料的热导率一般低于 $10\text{ W/mk}$ 。

[0004] 由以上论述可知,随着电子器件的快速发展和多样化,热管理成为一个复杂和个性化的问题,仅通过热传导方式来实现电子设备的热管理是远远不够。对周期性电子设备、短时大功率电子设备而言,相变储热技术大有可为。相变储热技术利用相变物质的物相转变(主要是固/液转变)来吸收和放出热量。具有吸热量大、温度波动小的优点。在紧凑型消费电子设备(如智能手机、平板电脑、智能手表等)的热管理过程中有得天独厚的优势。要想把相变物质用于电子设备的热管理过程中,必须要解决3个问题:

(1) 导热强化。相变物质吸热量大,但大部分相变物质的热导率较低。尤其是有机体系的相变物质,热导率多在 $0.1\text{ W/mK}$ 以下,对热量的响应速度慢,要提高其热导率及其对热量的响应速度;

(2) 固液封装。在固液转化的过程中,相变物质存在渗漏的可能,需通过合理的封装形式将相变物质封装起来;

(2) 超薄薄片/薄带的制备。如前所述,相变储热材料主要用在紧凑型电子设备的热管理过程中。这些电子设备自身尺寸有限,对相变储热材料的厚度要求严格,一般为 $0.3\text{ mm}$ 及以下。

### 发明内容

[0005] 本发明的目的之一是提供一种厚度在0.05~0.3mm,不易发生渗漏且热导率高的相变储热带。

[0006] 本发明的目的之一是这样实现的。

[0007] 一种相变储热带,包括多孔石墨带和有机相变物质,所述多孔石墨带的重量百分比为5~60%,有机相变物质的重量百分比为40~95%;

所述的多孔石墨带,是指以碳石墨材料制成的厚度在0.05~0.3mm之间、体积密度在0.05~0.6g/cm<sup>3</sup>之间的带;

所述的有机相变物质是指熔点在10~80℃有机物质。

[0008] 进一步地,所述碳石墨材料为氧化石墨烯或还原氧化石墨烯。

[0009] 进一步地,所述有机物质为烷烃或石蜡或脂肪酸。

[0010] 本目的之一的有益效果如下:这种相变储热带具有轻质(体积密度为1.0~1.4g/cm<sup>3</sup>)、超薄(厚度在0.05~0.3mm之间)、热导率高(热导率在1~30 W/mK)的优点。

本发明的目的二是提供一种相变储热带的制备方法。

[0011] 本发明的目的二是这样实现的。

[0012] 一种相变储热带的制备方法,包括所述多孔石墨带的重量百分比为5~60%,有机相变物质的重量百分比为40~95%;制造步骤如下:

步骤一,多孔石墨带的制备:以氧化石墨烯为原料,通过浆涂或抽滤方式,制成厚度在0.05~0.3mm之间的带,所述氧化石墨烯带的体积密度在0.05~0.6g/cm<sup>3</sup>之间;

步骤二,多孔石墨带的还原处理:将步骤一所得的氧化石墨烯带移除大部分氧原子,修复微观结构中的石墨面网,得到石墨质带;

步骤三,有机相变物质浸渗至多孔石墨带中:通过液相浸渗的方式将有机相变物质填充至步骤二所得的石墨质带中,形成具有相变储热功能的带。

[0013] 进一步地,所述浆涂方式是指将氧化石墨烯浆料涂覆或刮涂在衬底上形成一定厚度在0.05~0.3mm之间的带。

[0014] 进一步地,所述抽滤方式是指以氧化石墨烯浆料和水溶液为原料,通过抽滤的方式,将氧化石墨烯颗粒沉积在滤网或滤布上,形成厚度在0.05~0.3mm之间的带,并从滤网或滤布上转移下来。

[0015] 进一步地,所述步骤二中的还原处理,是指用高温设备处理步骤一中的多孔石墨带,在高温环境中移除多孔石墨带中的氧原子形成石墨质带,还原温度为600~2000℃。

[0016] 进一步地,所述步骤二中的还原处理,是指用强还原性物质移除步骤一中的多孔石墨带中的氧原子形成石墨质带,强还原性物质为水合肼或亚硫酸氢钠。

[0017] 进一步地,所述步骤三的液相浸渗过程,是指将有机相变物质加热至其熔点以上形成液态,并在常压、负压或正压环境中,将液态相变物质填充在步骤二中的石墨质带中。

[0018] 进一步地,所述步骤三中的液相浸渗的浸渗温度为60~200℃,浸渗压力为10Kpa~3Mpa。

[0019] 本目的二的有益效果如下:本发明以纳米尺寸的氧化石墨烯(GO)为原料,通过抽滤或浆涂等方式将其制成多孔石墨带(多孔氧化石墨烯带),通过控制其堆积过程可以获得超薄的相变储热带;再通过热还原/化学还原的方式将其转化为R-GO薄带。这些微观的孔径很小,通过微孔的毛细作用,熔融的相变材料很容易被吸附填充到微孔中,连通的多孔结构

将石墨均匀分布从而形成网络结构。相变材料即使发生融化也不会出现“跑冒滴漏”等相分离现象。与此同时,在热传递过程中,相变材料与导热性能良好的多孔石墨骨架导热通道接触面积增大,有效降低了界面热阻。相变储热带的导热能力和热响应速度得到明显提高,热导率可达5~60W/mK,相变潜热可达190KJ/kg以上。

### 附图说明

[0020] 图1为相变储热超带的工艺流程图。

[0021] 图2为相变储热超带的金相图。

[0022] 图3为纯石蜡及实施例1和实施例2的相变储热带的熔点和相变潜热图。

### 具体实施方式

[0023] 下面结合附图1和2及实施例对本发明作进一步描述:

一种相变储热带,包括多孔石墨带和有机相变物质,所述多孔石墨带的重量百分比为5~60%,有机相变物质的重量百分比为40~95 %;

所述的多孔石墨带,是指以碳石墨材料制成的厚度在0.05~0.3mm之间、体积密度在0.05~0.6g/cm<sup>3</sup>之间的带,体积密度在0.05~0.6g/cm<sup>3</sup>;所述碳石墨材料优选的为氧化石墨烯或还原氧化石墨烯等。

[0024] 所述的有机相变物质是指熔点在10~80℃有机物质,有机物质优选的为烷烃或石蜡或脂肪酸,如烷烃。

[0025] 液相浸渗过程包括常压浸渗、负压浸渗和正压浸渗。负压浸渗是指浸渗压力在10~100Kpa所完成的浸渗过程;常压浸渗是指浸渗压力在100Kpa所完成的浸渗过程;浸渗压力在100Kpa~3Mpa所完成的浸渗过程。高温设备为管式炉。

[0026] 实施例1,结合图3,一种相变储热带的制备方法:包括以下步骤:

(1)以浓度为10mg/ml的氧化石墨烯浆料为前驱体,在不锈钢衬底多次涂覆后形成厚度为0.5mm的氧化石墨烯带,即多孔石墨带,并将其从不锈钢衬底上移出,测其体积密度为0.05g/cm<sup>3</sup>。

[0027] (2)将多孔石墨带夹持在两个平整的陶瓷薄片之间,置于管式炉中,在真空气氛中加热至600℃,移除氧原子得到还原后的石墨质带,测量得到其厚度为0.3mm、体积密度为0.05 g/cm<sup>3</sup>。

[0028] (3)将石墨质带置于真空烘箱中,选择熔点为51℃的石蜡为相变物质,将两者整体加热至80℃,抽真空至10Kpa。保温保压30分钟后,得到相变储热带,其厚度为0.3mm、熔点为51.4℃、相变潜热为191.5KJ/kg、热导率为5.0 W/m·K,即附图3中的相变储热超带1。

[0029] 实施例2,结合图3:一种相变储热带的制备方法:包括以下步骤:

(1)以浓度为10mg/ml的氧化石墨烯浆料为前驱体,在不锈钢衬底多次涂覆后形成厚度为0.4mm的氧化石墨烯带,即多孔石墨带,并将其从不锈钢衬底上移出,测其体积密度为0.08g/cm<sup>3</sup>。

[0030] (2)将多孔石墨带夹持在两个平整的陶瓷薄片之间,置于管式炉中,在真空气氛中加热至800℃,移除氧原子得到还原后的石墨质带,测量得到其厚度为0.20mm、体积密度为0.08 g/cm<sup>3</sup>。

[0031] (3)将石墨质带置于真空烘箱中,选择熔点为51℃的石蜡为相变物质,将两者整体加热至90℃,抽真空至30Kpa。保温保压30分钟后,得到相变储热带,其厚度为0.2mm,熔点为51.4℃,相变潜热为142.0KJ/kg、热导率为11.3 W/m·K,即附图3中的相变储热带2。

[0032] 实施例3:一种相变储热带的制备方法:包括以下步骤:

(1)以浓度为10mg/ml的氧化石墨烯浆料为前驱体,在不锈钢衬底多次涂覆后形成厚度为0.2mm的氧化石墨烯带,即多孔石墨带。将其从不锈钢衬底上移出,测其体积密度为0.1g/cm<sup>3</sup>。

[0033] (2)将多孔石墨带带夹持在两个平整的陶瓷薄片之间,置于管式炉中,在真空气氛中加热至1000℃,移除氧原子得到还原后的石墨质带,测量得到其厚度为0.15mm、体积密度为0.1 g/ cm<sup>3</sup>。

[0034] (3)将石墨质带置于真空烘箱中,选择熔点为36.8℃的正二十烷为相变物质,将两者整体加热至50℃,抽真空至40Kpa。保温保压30分钟后,得到相变储热带,其厚度为0.15mm、熔点为37℃、相变潜热为185KJ/kg、热导率为6.5 W/m·K。

[0035] 实施例4:一种相变储热带的制备方法:包括以下步骤:

(1)以浓度为10mg/ml的氧化石墨烯浆料为前驱体,在不锈钢衬底多次涂覆后形成厚度为0.2mm的氧化石墨烯带,即多孔石墨带。将其从不锈钢衬底上移除,测其体积密度为0.1g/cm<sup>3</sup>。

[0036] (2)将多孔石墨带夹持在两个平整的陶瓷薄片之间,置于玻璃烧杯中。取含量为85%的水合肼作为化学还原剂,氧化石墨烯的重量与水合肼的比为1:1。将氧化石墨烯带浸入水合肼中,置于90℃的水浴中还原1小时,移除氧原子得到还原后的石墨质带。

[0037] (3)将石墨质带置于真空烘箱中,选择熔点为36.8℃的正二十烷为相变物质,将两者整体加热至50℃,抽真空至40Kpa。保温保压30分钟后,得到相变储热带,厚度为0.15mm,熔点为37℃,相变潜热为185KJ/kg、热导率为5.7 W/m·K。

[0038] 实施例5:一种相变储热带的制备方法:包括以下步骤:

(1)以浓度为10mg/ml的氧化石墨烯浆料为前驱体,在不锈钢衬底多次涂覆后形成厚度为0.2mm的氧化石墨带,即多孔石墨带,将其从不锈钢衬底上移除,测其体积密度为0.2g/cm<sup>3</sup>。

[0039] (2)将多孔石墨带带夹持在两个平整的陶瓷薄片之间,置于玻璃烧杯中。取含量为85%的水合肼作为化学还原剂。氧化石墨烯的重量与水合肼的比为1:0.8。将氧化石墨烯带浸入水合肼中,置于90℃的水浴中还原1小时,移除氧原子得到还原后的石墨质带。

[0040] (3)将石墨质带置于真空烘箱中,选择熔点为36.8℃的正二十烷为相变物质,将两者整体加热至50℃,在常压下浸渗30分钟后,得到相变储热带,其厚度为0.15mm、熔点为37℃、相变潜热为140KJ/kg、热导率为11.4 W/mK。

[0041] 实施例6:一种相变储热带的制备方法:包括以下步骤:

(1)以浓度为10mg/ml的氧化石墨烯浆料为前驱体,用不锈钢滤网进行抽滤。控制抽滤的时间,确保氧化石墨烯颗粒的堆积高度为0.2mm,将其从不锈钢衬底上移除,得到氧化石墨烯带,即多孔石墨带,测其体积密度为0.3g/cm<sup>3</sup>。

[0042] (2)将多孔石墨带夹持在两个平整的石墨薄片之间,置于管式炉中,在真空气氛中加热至1000℃,移除氧原子得到还原后的石墨质带,测量得到其厚度为0.12mm、体积密度为

0.3 g/cm<sup>3</sup>。

[0043] (3)将还原后的石墨质带置于真空烘箱中,选择熔点为36.8℃的正二十烷为相变物质,将两者整体加热至50℃,在常压下浸渗30分钟后,得到相变储热带,其厚度为0.12mm、熔点为37℃、相变潜热为120KJ/kg、热导率为31.3 W/mK。

[0044] 实施例7:一种相变储热带的制备方法:包括以下步骤:

(1)以浓度为10mg/ml的还原氧化石墨烯浆料为前驱体,用不锈钢滤网进行抽滤。控制抽滤的时间,确保氧化石墨烯颗粒的堆积高度为0.2mm,并将其从不锈钢衬底上移除,得到还原氧化石墨烯带,即多孔石墨带,测其体积密度为0.6g/cm<sup>3</sup>。

[0045] (2)将多孔石墨带夹持在两个平整的石墨薄片之间,置于管式炉中,在真空气氛中加热至1000℃,移除氧原子得到还原后的石墨质带,测量得到其厚度为0.12mm、体积密度为0.6 g/cm<sup>3</sup>。

[0046] (3)将还原后的石墨质带置于真空烘箱中,选择熔点为54℃的肉豆蔻酸为相变物质,将两者整体加热至90℃,加压至3 Mpa,保温保压浸渗30分钟后,得到相变储热带,其厚度为0.12mm、熔点为55℃、相变潜热为81.7KJ/kg、热导率为52.6 W/mK。

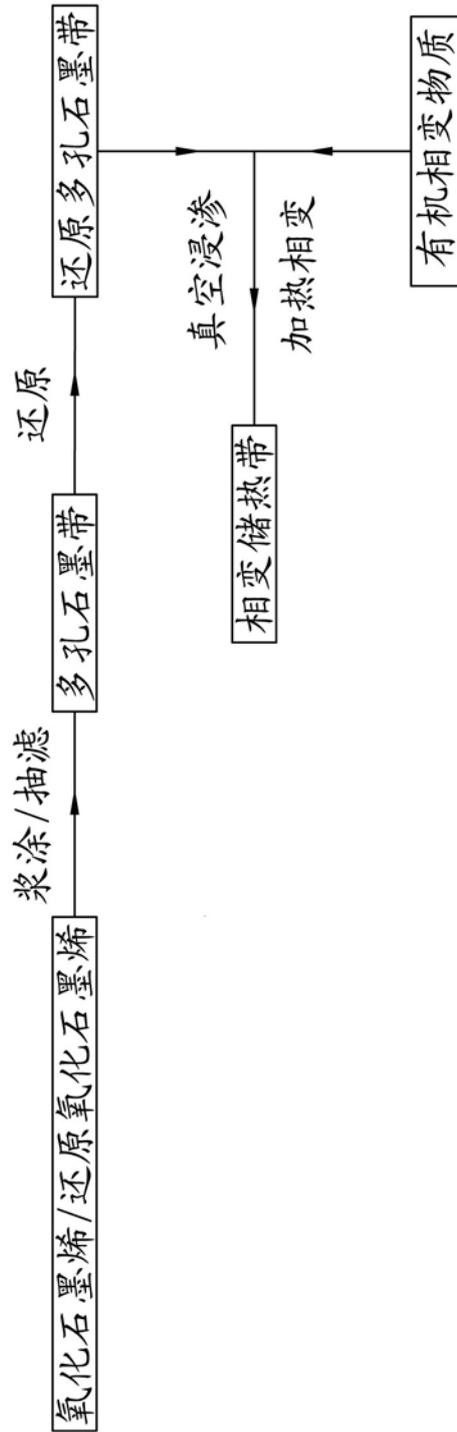


图1

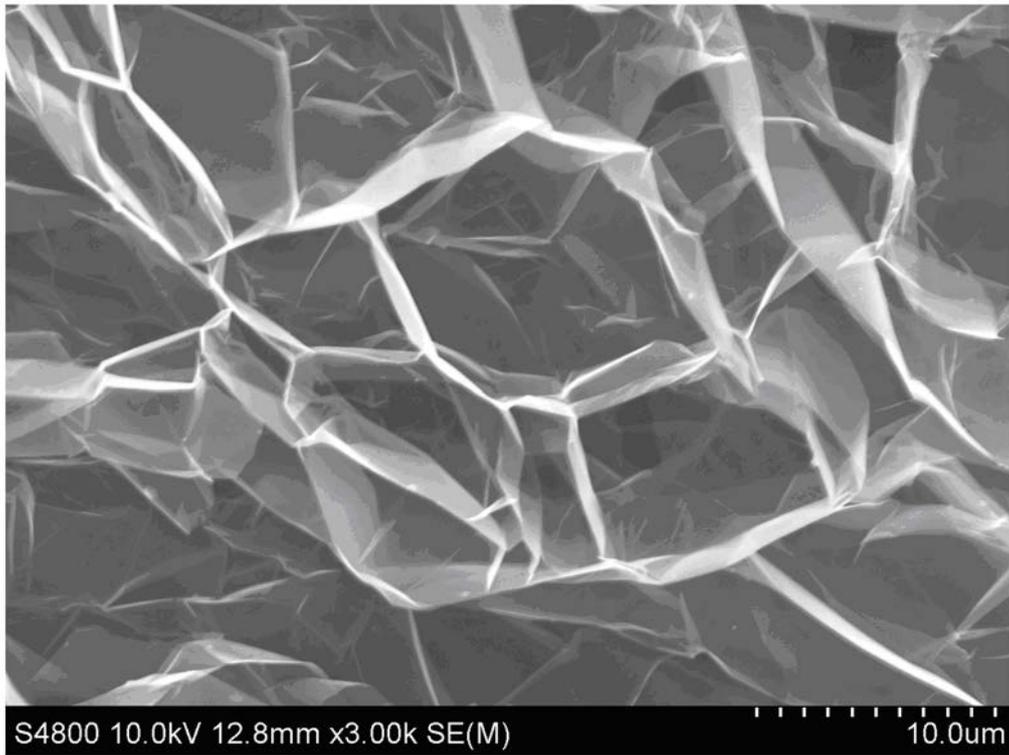


图2

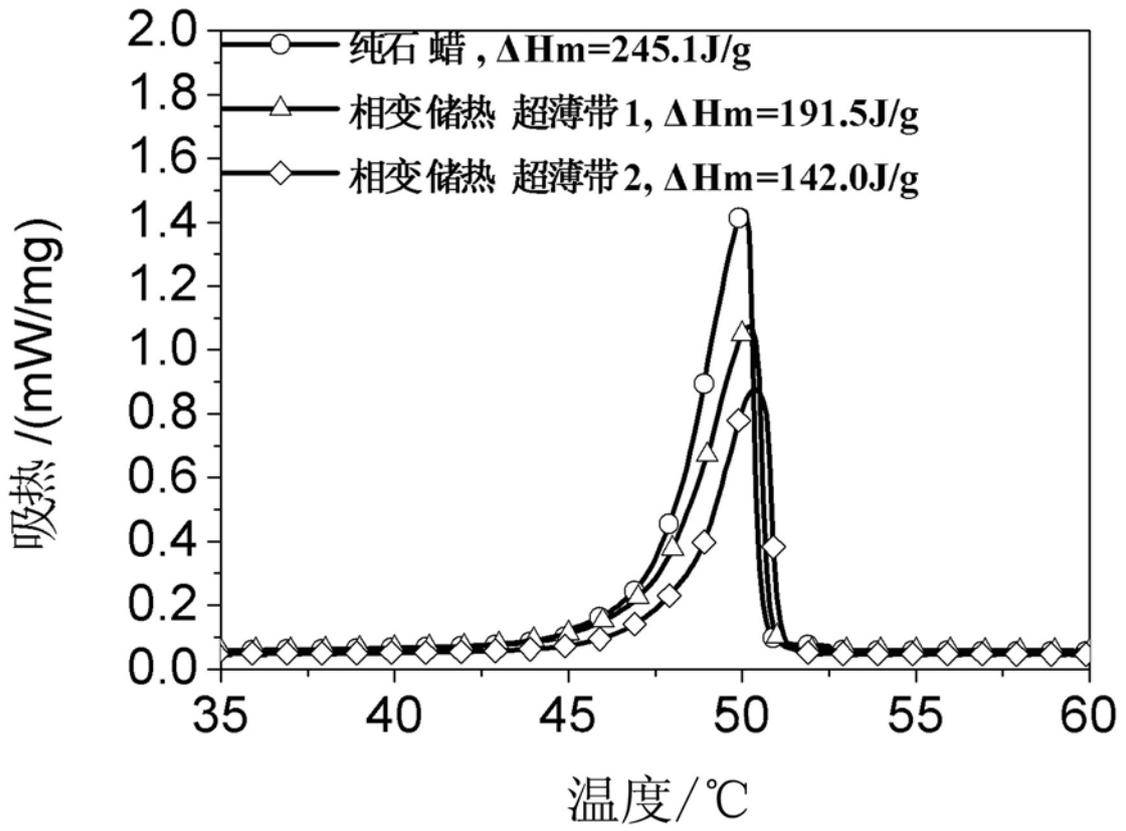


图3