



(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 110340368 A

(43)申请公布日 2019.10.18

(21)申请号 201910713638.2

(22)申请日 2019.08.02

(71)申请人 中国科学院山西煤炭化学研究所
地址 030001 山西省太原市桃园南路27号

(72)发明人 刘占军 刘犇 张东卿 闫曦

(74)专利代理机构 太原市科瑞达专利代理有限公司 14101

代理人 赵祺

(51)Int.Cl.

B22F 7/04(2006.01)

B22F 3/14(2006.01)

C09K 5/14(2006.01)

权利要求书1页 说明书7页

(54)发明名称

一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法

(57)摘要

本发明提供了一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法,属于金属-石墨复合材料制备技术领域,解决石墨膜铜基复合材料中石墨膜和铜基体间结合性差的技术问题,所述复合材料是由石墨膜、合金粉末粘结层与铜基体为单元组成的石墨膜铜基复合材料。本发明制备方法依次包括以下步骤:石墨膜和铜基体的预处理、合金粉末的制备、合金粉末溶液的配制、层铺法制备预制体、预制体真空热压烧结,最终制备出高性能的石墨膜铜基复合材料。本发明便于制备,石墨和铜金属层结合力强,热导率高,密度低,是很有前景的新型热管理材料。

1. 一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法,其特征在于包括以下步骤:

S1、预处理:将石墨膜放置在丙酮溶液中浸泡10~30min,然后取出石墨膜,将石墨膜在酒精中超声波清洗1~10min,并将铜基材放置在酒精中超声波清洗5~20min,最后取出超声波清洗后的石墨膜与铜基材放置于烘箱中,在50~80℃下烘干备用;

S2、合金粉末的制备:将铜粉与钛粉或者铜粉与铬粉按质量比为50:1~5:1称取原料,将原料粉末放置在球磨机中球磨,球磨条件为:氩气保护,球料比:50:1~10:1,球磨时间:60min~1200min,每隔10min反转一次,球磨后的合金粉末留待后步使用;

S3、合金粉末溶液的配制:将步骤S2制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:1~1:5称取原料,将合金粉末与酒精搅拌均匀配制成合金粉末溶液留待后步使用;

S4、层铺法制备预制体:

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液,然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜基材,然后在第一层铜基材的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液,确保第二层合金粉末溶液在第一层铜基材的表面均匀涂布;

II、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜,重复步骤I操作,直至石墨膜、合金粉末溶液与铜基材叠加到目标厚度为止;

III、将步骤II制备的预制体放置在烘箱中在50~80℃下烘干2~10h,确保酒精完全挥发,制得预制体;

S5、将步骤S4烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结,制得高性能石墨膜铜基复合材料。

2. 根据权利要求1所述一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法,其特征在于:所述的石墨膜为人工合成石墨膜,其厚度为15~100 μm ,面内热导率为400~1500W/mk。

3. 根据权利要求1所述一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法,其特征在于:所述铜基材的材质为铜及其合金,铜基材的形态为箔或板。

4. 根据权利要求1所述一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法,其特征在于:所述步骤S2中的合金粉末为铜粉与钛粉的混合合金粉末,或者铜粉与铬粉的混合合金粉末粉。

5. 根据权利要求1所述一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法,其特征在于:所述步骤S5中热压温度为800~1100℃。

6. 根据权利要求1所述一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法,其特征在于:所述步骤S5中热压压力为0~50MPa。

7. 根据权利要求1所述一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法,其特征在于:所述步骤S5中热压保压时间为0.5~2h。

一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法

技术领域

[0001] 本发明属于金属-石墨复合材料制备技术领域,具体涉及一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法。

背景技术

[0002] 随着电子设备不断向小型化、集成化和高效化发展,导致工作过程中能量密度不断增大,这就对热管理材料的导热性能和机械性能均提出了更高的要求。

[0003] 石墨膜因其超高的导热系数和良好的比热容,其面内热导率可达1200-1800W/mk,已经成功商业化并应用于手机和电脑的散热。由于高导热的石墨膜力学性能较差,极大限制了石墨膜材料的应用范围,因此将高导热石墨膜和铜金属制成复合材料,是一种很有前途的高效热管理材料,然而石墨和铜的浸润性较差,而石墨膜和铜金属膜的结合性会更差,所以亟待解决制备石墨膜铜基复合材料的方法,使石墨膜能够广泛应用在高效热管理材料领域。

发明内容

[0004] 为了克服现有技术中的不足,解决石墨膜金属复合材料中石墨膜和金属膜的结合性差的技术问题,本发明提供一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法。

[0005] 本发明的设计构思为:一方面,铜钛、铜铬合金和石墨的浸润角较低,结合性能好;另一方面铜钛、铜铬合金与铜基材的结合性能也较好。所以本发明采用铜钛合金或铜铬合金作为石墨膜和铜基体间的高温粘结剂,能较好的解决石墨膜和铜基材不浸润以及结合力较差的问题。

[0006] 本发明通过以下技术方案予以实现。

[0007] 一种高性能石墨膜铜基复合材料的制备方法,包括以下步骤:

S1、预处理:将石墨膜放置在丙酮溶液中浸泡10~30min,然后取出石墨膜,将石墨膜在酒精中超声波清洗1~10min,并将铜基材放置在酒精中超声波清洗5~20min,最后取出超声波清洗后的石墨膜与铜基材放置于烘箱中,在50~80℃下烘干备用;

S2、合金粉末的制备:将铜粉与钛粉或者铜粉与铬粉按质量比为50:1~5:1称取原料,将原料粉末放置在球磨机中球磨,球磨条件为:氩气保护,球料比:50:1~10:1,球磨时间:60min~1200min,每隔10min反转一次,球磨后的合金粉末留待后步使用;

S3、合金粉末溶液的配制:将步骤S2制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:1~1:5称取原料,将合金粉末与酒精搅拌均匀配制成合金粉末溶液留待后步使用;

S4、层铺法制备预制体:

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液,然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜基材,然后在第一层铜基材的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液,确保第二层合金粉末溶液在第一层铜基材的表面均匀涂布;

II、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜,重复步骤I操作,直至石墨膜、

合金粉末溶液与铜基材叠加到目标厚度为止；

Ⅲ、将步骤Ⅱ制备的预制体放置在烘箱中在50~80℃下烘干2~10h,确保酒精完全挥发,制得预制体；

S5、将步骤S4烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结,制得高性能石墨膜铜基复合材料。

[0008] 进一步地,所述的石墨膜为人工合成石墨膜,其厚度为15~100 μm ,面内热导率为400~1500W/mk。

[0009] 进一步地,铜基材的材质为铜及其合金,铜基材的形态为箔或板。

[0010] 进一步地,所述步骤S2中的合金粉末为铜粉与钛粉的混合合金粉末,或者铜粉与铬粉的混合合金粉末。

[0011] 进一步地,所述步骤S5中热压温度为800~1100℃。

[0012] 进一步地,所述步骤S5中热压压力为0~50MPa。

[0013] 进一步地,所述步骤S5中热压保压时间为0.5~2h。

[0014] 本发明与现有技术相比具有以下有益效果：

本发明制备的石墨膜铜基复合材料具有较高的热导率,并且石墨膜和铜基材的结合性能较好,集铜和石墨材料的优点于一体,是一种较有竞争力的新型热管理材料。且制备工艺简单,所制得的复合材料的形状、尺寸、厚度以及热导率均可以调节,并能够在高温条件下使用,具有更广的应用范围。

具体实施方式

[0015] 为详细说明本发明的技术方案、结构特征、所实现的技术效果,以下结合具体实施方式详予说明。下列实施例仅用于说明本发明,而不应视为限制本发明的范围。实施例1

S1、预处理:将厚度约为30 μm 的石墨膜(热导率为1200W/mk)放在丙酮溶液中浸泡10min,取出石墨膜后在酒精中超声波清洗1min,并将铜基材放置在酒精中超声波清洗5min,最后取出石墨膜和铜基材放置于烘箱中,在50℃下烘干备用。

[0016] S2、合金粉末的制备:将铜粉和钛粉按质量比为30:1称取原料,将原料粉末放置在球磨机中球磨,球磨条件:氩气保护,球料比:50:1,球磨时间:120min,每隔10min反转一次,避免粘料,球磨后获得合金粉末。

[0017] S3、合金粉末溶液的配制:将步骤S2所制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:2进行配制,搅拌均匀后获得合金粉末溶液。

[0018] S4、层铺法制备预制体:

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液,然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜箔(厚度10 μm),然后在第一层铜箔的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液,确保第二层合金粉末溶液在第一层铜箔的表面均匀涂布；

Ⅱ、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜,重复步骤I操作,直至石墨膜、合金粉末溶液与铜箔叠加到目标厚度为止；

Ⅲ、将步骤Ⅱ制备的预制体放置在烘箱中在50℃下烘干8h,确保酒精完全挥发,制得预制体；

S5、将烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结,其中热压温度为800℃,热压压力为10MPa,热压保压时间为0.5h,制得高性能石墨膜铜基复合材料,所制备的复合材料的石墨膜的体积分数为64%,界面结合性好,热导率高达732W/mk。

[0019] 实施例2

S1、预处理:将厚度约为30 μ m的石墨膜(热导率为1200W/mk)放置在丙酮溶液中浸泡15min,然后取出石墨膜,将石墨膜在酒精中超声波清洗5min,并将铜基材放置在酒精中超声波清洗10min,最后取出超声波清洗后的石墨膜与铜基材放置于烘箱中,在60℃下烘干备用;

S2、合金粉末的制备:将铜粉与钛粉按质量比为20:1称取原料,将原料粉末放置在球磨机中球磨,球磨条件为:氩气保护,球料比:40:1,球磨时间:480min,每隔10min反转一次,避免粘料,球磨后的合金粉末留待后步使用;

S3、合金粉末溶液的配制:将步骤S2制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:3称取原料,将合金粉末与酒精搅拌均匀配制成合金粉末溶液留待后步使用;

S4、层铺法制备预制体:

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液,然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜箔(厚度10 μ m),然后在第一层铜箔的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液,确保第二层合金粉末溶液在第一层铜箔的表面均匀涂布;

II、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜,重复步骤I操作,直至石墨膜、合金粉末溶液与铜箔叠加到目标厚度为止;

III、将步骤II制备的预制体放置在烘箱中在60℃下烘干5h,确保酒精完全挥发,制得预制体;

S5、将步骤S4烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结,其中热压温度为900℃,热压压力为20MPa,热压保压时间为1h,制得高性能石墨膜铜基复合材料,所制备的复合材料的石墨膜的体积分数为63.6%,界面结合性好,热导率高达764W/mk。

[0020] 实施例3

S1、预处理:将厚度约为30 μ m的石墨膜(热导率为1200W/mk)放置在丙酮溶液中浸泡20min,然后取出石墨膜,将石墨膜在酒精中超声波清洗10min,并将铜基材放置在酒精中超声波清洗15min,最后取出超声波清洗后的石墨膜与铜基材放置于烘箱中,在70℃下烘干备用;

S2、合金粉末的制备:将铜粉与钛粉按质量比为9:1称取原料,将原料粉末放置在球磨机中球磨,球磨条件为:氩气保护,球料比:30:1,球磨时间:960min,每隔10min反转一次,避免粘料,球磨后的合金粉末留待后步使用;

S3、合金粉末溶液的配制:将步骤S2制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:4称取原料,将合金粉末与酒精搅拌均匀配制成合金粉末溶液留待后步使用;

S4、层铺法制备预制体:

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液,然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜箔(厚度10 μ m),然后在第一层铜箔的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液,确保第二层合金粉末溶液在第一层铜箔的表面均匀涂

布；

II、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜，重复步骤I操作，直至石墨膜、合金粉末溶液与铜箔叠加到目标厚度为止；

III、将步骤II制备的预制体放置在烘箱中在70℃下烘干2h，确保酒精完全挥发，制得预制体；

S5、将步骤S4烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结，其中热压温度为1050℃，热压压力为30MPa，热压保压时间为1.5h，制得高性能石墨膜铜基复合材料，所制备的复合材料的石墨膜的体积分数为63.2%，界面结合性好，热导率高达793W/mk。

[0021] 实施例4

S1、预处理：将厚度约为30μm的石墨膜（热导率为1200W/mk）放置在丙酮溶液中浸泡10min，然后取出石墨膜，将石墨膜在酒精中超声波清洗1min，并将铜基材放置在酒精中超声波清洗5min，最后取出超声波清洗后的石墨膜与铜基材放置于烘箱中，在50℃下烘干备用；

S2、合金粉末的制备：将铜粉与铬粉按质量比为50:1称取原料，将原料粉末放置在球磨机中球磨，球磨条件为：氩气保护，球料比：50:1，球磨时间：120min，每隔10min反转一次，避免粘料，球磨后的合金粉末留待后步使用；

S3、合金粉末溶液的配制：将步骤S2制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:2称取原料，将合金粉末与酒精搅拌均匀配制成合金粉末溶液留待后步使用；

S4、层铺法制备预制体：

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液，然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜箔（厚度10μm），然后在第一层铜箔的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液，确保第二层合金粉末溶液在第一层铜箔的表面均匀涂布；

II、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜，重复步骤I操作，直至石墨膜、合金粉末溶液与铜箔叠加到目标厚度为止；

III、将步骤II制备的预制体放置在烘箱中在50℃下烘干8h，确保酒精完全挥发，制得预制体；

S5、将步骤S4烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结，其中热压温度为800℃，热压压力为10MPa，热压保压时间为0.5h，制得高性能石墨膜铜基复合材料，所制备的复合材料的石墨膜的体积分数为61.4%，界面结合性好，热导率高达783W/mk。

[0022] 实施例5

S1、预处理：将厚度约为30μm的石墨膜（热导率为1200W/mk）放置在丙酮溶液中浸泡15min，然后取出石墨膜，将石墨膜在酒精中超声波清洗5min，并将铜基材放置在酒精中超声波清洗10min，最后取出超声波清洗后的石墨膜与铜基材放置于烘箱中，在60℃下烘干备用；

S2、合金粉末的制备：将铜粉与铬粉按质量比为25:1称取原料，将原料粉末放置在球磨机中球磨，球磨条件为：氩气保护，球料比：40:1，球磨时间：480min，每隔10min反转一次，避免粘料，球磨后的合金粉末留待后步使用；

S3、合金粉末溶液的配制：将步骤S2制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:3称取原

料,将合金粉末与酒精搅拌均匀配制成合金粉末溶液留待后步使用;

S4、层铺法制备预制体:

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液,然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜箔(厚度 $10\mu\text{m}$),然后在第一层铜箔的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液,确保第二层合金粉末溶液在第一层铜箔的表面均匀涂布;

II、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜,重复步骤I操作,直至石墨膜、合金粉末溶液与铜箔叠加到目标厚度为止;

III、将步骤II制备的预制体放置在烘箱中在 60°C 下烘干5h,确保酒精完全挥发,制得预制体;

S5、将步骤S4烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结,其中热压温度为 900°C ,热压压力为 20MPa ,热压保压时间为1h,制得高性能石墨膜铜基复合材料,所制备的复合材料的石墨膜的体积分数为62.1%,界面结合性好,热导率高达 811W/mk 。

[0023] 实施例6

S1、预处理:将厚度约为 $30\mu\text{m}$ 的石墨膜(热导率为 1200W/mk)放置在丙酮溶液中浸泡20min,然后取出石墨膜,将石墨膜在酒精中超声波清洗10min,并将铜基材放置在酒精中超声波清洗15min,最后取出超声波清洗后的石墨膜与铜基材放置于烘箱中,在 70°C 下烘干备用;

S2、合金粉末的制备:将铜粉与铬粉按质量比为13:1称取原料,将原料粉末放置在球磨机中球磨,球磨条件为:氩气保护,球料比:30:1,球磨时间:960min,每隔10min反转一次,避免粘料,球磨后的合金粉末留待后步使用;

S3、合金粉末溶液的配制:将步骤S2制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:4称取原料,将合金粉末与酒精搅拌均匀配制成合金粉末溶液留待后步使用;

S4、层铺法制备预制体:

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液,然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜箔(厚度 $10\mu\text{m}$),然后在第一层铜箔的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液,确保第二层合金粉末溶液在第一层铜箔的表面均匀涂布;

II、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜,重复步骤I操作,直至石墨膜、合金粉末溶液与铜箔叠加到目标厚度为止;

III、将步骤II制备的预制体放置在烘箱中在 70°C 下烘干2h,确保酒精完全挥发,制得预制体;

S5、将步骤S4烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结,其中热压温度为 1050°C ,热压压力为 30MPa ,热压保压时间为1.5h,制得高性能石墨膜铜基复合材料,所制备的复合材料的石墨膜的体积分数为62.5%,界面结合性好,热导率高达 786W/mk 。

[0024] 实施例7

本实施例7作为实施例3的对比例。

[0025] S1、预处理:将厚度约为 $100\mu\text{m}$ 的石墨膜(热导率为 600W/mk)放置在丙酮溶液中浸泡15min,然后取出石墨膜,将石墨膜在酒精中超声波清洗10min,并将铜基材放置在酒精中

超声波清洗15min,最后取出超声波清洗后的石墨膜与铜基材放置于烘箱中,在70℃下烘干备用;

S2、合金粉末的制备:将铜粉与钛粉按质量比为9:1称取原料,将原料粉末放置在球磨机中球磨,球磨条件为:氩气保护,球料比:30:1,球磨时间:960min,每隔10min反转一次,避免粘料,球磨后的合金粉末留待后步使用;

S3、合金粉末溶液的配制:将步骤S2制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:4称取原料,将合金粉末与酒精搅拌均匀配制成合金粉末溶液留待后步使用;

S4、层铺法制备预制体:

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液,然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜板(厚度100 μm),然后在第一层铜板的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液,确保第二层合金粉末溶液在第一层铜板的表面均匀涂布;

II、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜,重复步骤I操作,直至石墨膜、合金粉末溶液与铜板叠加到目标厚度为止;

III、将步骤II制备的预制体放置在烘箱中在70℃下烘干2h,确保酒精完全挥发,制得预制体;

S5、将步骤S4烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结,其中热压温度为1050℃,热压压力为30MPa,热压保压时间为1.5h,制得高性能石墨膜铜基复合材料,所制备的复合材料的石墨膜的体积分数为49%,界面结合性好,热导率高达515W/mk。

[0026] 实施例8

本实施例8作为实施例5的对比例。

[0027] S1、预处理:将厚度约为30 μm 的石墨膜(热导率为1200W/mk)放置在丙酮溶液中浸泡15min,然后取出石墨膜,将石墨膜在酒精中超声波清洗5min,并将铜基材放置在酒精中超声波清洗10min,最后取出超声波清洗后的石墨膜与铜基材放置于烘箱中,在60℃下烘干备用;

S2、合金粉末的制备:将铜粉与铬粉按质量比为25:1称取原料,将原料粉末放置在球磨机中球磨,球磨条件为:氩气保护,球料比:40:1,球磨时间:480min,每隔10min反转一次,避免粘料,球磨后的合金粉末留待后步使用;

S3、合金粉末溶液的配制:将步骤S2制得的合金粉末和酒精按照质量比为1:3称取原料,将合金粉末与酒精搅拌均匀配制成合金粉末溶液留待后步使用;

S4、层铺法制备预制体:

I、在第一层石墨膜表面刷涂步骤S3制备的第一层合金粉末溶液,然后在第一层合金粉末溶液上方放置与第一层石墨膜等面积的第一层铜箔(厚度10 μm),然后在第一层铜箔的上表面再刷涂第二层合金粉末溶液,确保第二层合金粉末溶液在第一层铜箔的表面均匀涂布;

II、在第二层合金粉末溶液的表面再放置第二层石墨膜,重复步骤I操作,直至石墨膜、合金粉末溶液与铜箔叠加到目标厚度为止;

III、将步骤II制备的预制体放置在烘箱中在60℃下烘干5h,确保酒精完全挥发,制得预制体;

S5、将步骤S4烘干后的预制体放置在真空热压炉中进行真空热压烧结,其中热压温度为900℃,热压压力为20MPa,热压保压时间为1h,制得高性能石墨膜铜基复合材料,所制备的复合材料的石墨膜的体积分数为75%,界面结合性好,热导率高达856W/mk。

[0028] 本发明并不受上述实施方式的限制,其他的任何未背离本发明的精神实质与原理下所作的改变、修饰、替代、组合、简化,均应为等效的置换方式,都包含在本发明的保护范围之内。