

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
7. Mai 2009 (07.05.2009)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 2009/056544 A2

(51) Internationale Patentklassifikation:

B22F 7/04 (2006.01) C22C 47/08 (2006.01)  
C22C 1/10 (2006.01) B32B 15/04 (2006.01)  
C22C 26/00 (2006.01)

(74) Anwalt: MÜLLER, Thomas; Müller & Schubert, Innere  
Wiener Strasse 13, 81667 München (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2008/064609

(22) Internationales Anmeldedatum:  
28. Oktober 2008 (28.10.2008)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
102007051570.9 29. Oktober 2007 (29.10.2007) DE

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): FUTURECARBON GMBH [DE/DE]; Gottlieb-Keim-Strasse 60, 95448 Bayreuth (DE). AUSTRIAN RESEARCH CENTERS GMBH [AT/AT]; Donau-City-Strasse 1, A-1220 Wien (AT).

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(72) Erfinder; und  
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LORENZEN, Dirk [DE/DE]; Bertholt-Brecht-Strasse 4, 07745 Jena (DE). SCHUBERT, Tim [DE/DE]; Johann-Sebastian-Bach-Strasse 14, 95448 Bayreuth (DE). NEUBAUER, Erich [AT/AT]; Johannesstrasse 45, A-7082 Donnerskirchen (AT).

Veröffentlicht:  
— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

(54) Title: METHOD FOR THE PRODUCTION OF A COMPOSITE MATERIAL, COMPOSITE MATERIAL, AND COMPOSITE MATERIAL PRODUCT

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINES VERBUNDWERKSTOFFS SOWIE VERBUNDWERKSTOFF UND VERBUNDWERKSTOFFKÖRPER

(57) Abstract: The invention relates to a method for producing a composite material or composite material product or composite product comprising a carbon-containing material, particularly a carbon nanomaterial, and a metallic material. The invention also relates to a composite material, a composite material product, and a composite product. In order to produce a composite material that has the greatest and most isotropic heat conductivity possible, said method encompasses the following steps: a stack of two or more layers is produced, at least one of which is designed in the form of a carbon-containing precursor and at least one of which is designed in the form of a metal-containing matrix layer; the stack of layers is heated to a specific process temperature at which the matrix layer fuses; the fused matrix material completely infiltrates the precursor; and the obtained composite material is cooled.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffs oder Verbundwerkstoffkörpers oder Verbundkörpers, bestehend aus einem kohlenstoffhaltigen Material, insbesondere einem Kohlenstoffnanomaterial, und einem metallischen Material, sowie einen Verbundwerkstoff, einen Verbundwerkstoffkörper, einen Verbundkörper. Um einen Verbundwerkstoff zu schaffen, der eine möglichst gute und möglichst isotrope Wärmeleitfähigkeit aufweist, umfasst das Verfahren folgende Schritte: Herstellen eines Schichtstapels aus zwei oder mehr Schichten, wobei wenigstens eine der Schichten in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs ausgebildet ist und wobei wenigstens eine Schicht in Form einer metallhaltigen Matrixschicht ausgebildet ist; Aufheizen des Schichtstapels auf eine bestimmte Prozesstemperatur, bei der die Matrixschicht aufgeschmolzen wird; vollständiges Infiltrieren des Zwischenstoffs mit aufgeschmolzenem Matrixmaterial; und Abkühlen des entstandenen Verbundwerkstoffs.

WO 2009/056544 A2

## Beschreibung

### **Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffs sowie Verbundwerkstoff und Verbundwerkstoffkörper**

5

Die vorliegende Erfindung betrifft zunächst ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffs oder eines Verbundwerkstoffkörpers oder eines Verbundkörpers, bestehend aus einem kohlenstoffhaltigen Material, insbesondere einem Kohlenstoffnanomaterial, und einem metallischen Material. Weiterhin betrifft die Erfindung auch einen solchen Verbundwerkstoff, einen Verbundwerkstoffkörper sowie einen Verbundkörper, bestehend aus einem solchen Verbundwerkstoff.

10

15

Derartige Verbundwerkstoffe sind bereits in verschiedenen Ausgestaltungen im Stand der Technik bekannt.

20

25

30

Beispielsweise wird in der JP 2006001232 A ein Verbundwerkstoff offenbart, der eine gute Wärmeleitfähigkeit aufweisen soll, und der als Wärmesenke verwendet werden kann. Die Herstellung dieses Verbundwerkstoffes ist anhand der Querschnittsansichten von Fig. 1a und 1b veranschaulicht und erfolgt, indem verschiedene Schichten unterschiedlicher Materialien laminiert werden. Bei einem Schichttyp handelt es sich um Schichten 10 aus einem kristallinen Kohlenstoffmaterial, bei dem es sich beispielsweise um Kohlenstoff-Nanotubes handeln kann. Der andere Schichttyp besteht aus Metallschichten 20, 21, 22. Die Schichten werden, wie in Fig. 1a dargestellt, übereinander zu einem Stapel 51 angeordnet und anschließend einem „Verbundschritt“ unterzogen. Bei diesem Verbundschritt handelt es sich nach der bekannten Lehre um einen Sinterprozess, der bei erhöhten Temperaturen durchgeführt wird. Die Sintertemperaturen liegen dabei im Bereich der Schmelztemperatur der Metalle der Metallschichten. Im gefertigten Sinterkörper 55 liegen, wie in Fig. 1b dargestellt, zwischen im wesentlichen unveränderten Metallschichten 20, 21, 22 im wesentlichen gesinterte

Kohlenstoffschichten 15 vor, deren Dicke durch die Sinterung deutlich unter der der ursprünglichen Kohlenstoffschichten 10 liegt.

Nachteilig bei dieser bekannten Lösung ist allerdings, dass die einzelnen  
5 Schichtstrukturen während des Verbundschritts nicht aufgelöst werden. Vielmehr erfolgt durch die Erhitzung nur eine Anschmelzung der Schichten, und damit lediglich eine Verschmelzung in den Randbereichen. Aus diesem Grund lässt sich bei dem bekannten Verbundwerkstoff nur eine anisotrope und zudem inhomogene  
10 Wärmeleitfähigkeit realisieren. Das bedeutet, dass der Grad der Wärmeleitfähigkeit davon abhängt, wie die Füllstoffe im Verbundwerkstoff ausgerichtet sind und in welcher Orientierung sich der Verbundwerkstoff zu seinem äußeren Bezugssystem befindet.

Die Patentschrift US 6,649,265 B1 offenbart die Infiltration eines kohlenstoffhaltigen  
15 Körpers mit einem Matrixmetall zur Schaffung eines Kohlenstoff-Metall-Verbundwerkstoffes. Nachteilig an diesem Verfahren ist der große Diffusionsweg und die große Diffusionszeit des Matrixmetalls in den kohlenstoffhaltigen Körper bei der Infiltration, die zu einer unvollständigen Infiltration führen kann und/ oder zu einer Auflösung beziehungsweise Reaktion der Kohlenstoffstrukturen im beziehungsweise  
20 mit dem Matrixmetall, die mit einer lokalen Verringerung der Wärmeleitfähigkeit insbesondere in den äußeren Randbereichen des gebildeten Verbundwerkstoffbereiches einhergeht.

Ausgehend vom genannten Stand der Technik liegt der vorliegenden Erfindung die  
25 Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffs sowie einen Verbundwerkstoff, einen Verbundwerkstoffkörper und einen Verbundkörper bereitzustellen, mit dem die zuvor genannten Nachteile vermieden werden können. Insbesondere soll eine Lösung für einen Verbundwerkstoff bereitgestellt werden, der eine möglichst gute und möglichst isotrope Wärmeleitfähigkeit aber auch andere  
30 Eigenschaften wie die elektrische Leitfähigkeit oder die thermische Ausdehnung aufweist, so dass die Eigenschaften richtungsunabhängig sind und sich der Verbundwerkstoff in allen Raumrichtungen möglichst gleich verhält.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch das Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffs oder Verbundwerkstoffkörpers mit den Merkmalen gemäß dem unabhängigen Patentanspruch 1, den Verbundwerkstoff mit den Merkmalen gemäß dem unabhängigen Patentanspruch 8, den Verbundwerkstoffkörper mit den Merkmalen gemäß dem unabhängigen Patentanspruch 15 sowie den Verbundkörper mit den Merkmalen gemäß dem unabhängigen Patentanspruch 16. Weitere Merkmale und Details der Erfindung ergeben sich aus den Unteransprüchen, der Beschreibung sowie den Zeichnungen. Dabei gelten Merkmale und Details, die im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren beschrieben sind, selbstverständlich auch im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verbundwerkstoff, dem erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffkörper und dem erfindungsgemäßen Verbundkörper, so dass das bezüglich des Verfahrens Gesagte vollinhaltlich auch im Zusammenhang mit dem Verbundwerkstoff, dem Verbundwerkstoffkörper und dem Verbundkörper gilt, und jeweils umgekehrt.

Die vorliegende Erfindung stellt einen Verbundwerkstoff sowie einen Verbundwerkstoffkörper, ebenso wie ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffs bereit, wobei der Verbundwerkstoff eine gute thermische Leitfähigkeit zwischen dem kohlenstoffhaltigen Material und dem metallischen Material aufweist. Dies wird dadurch unterstützt, dass eine gute Benetzbarkeit vorliegt. Der Verbundwerkstoff stellt nunmehr einen Gesamtverbund dar, bei dem die ursprünglich, im Ausgangszustand vorhandenen Einzelschichten der Materialien aufgelöst sind. Der Zwischenstoff, der aus wenigstens einem Ausgangsstoff hergestellt wurde, bleibt in seiner Ausgangsstruktur nicht erhalten. Vielmehr wird er von dem metallischen Matrixmaterial infiltriert, wobei das metallische Matrixmaterial in den Zwischenstoff „aufgesogen“ wird. Während im Stand der Technik Lösungen bekannt sind, bei denen eine geschüttete kohlenstoffhaltige Pulverschicht auf ein Substrat aufgebracht wird, ist der Zwischenstoff gemäß der vorliegenden Erfindung in besonderer Weise ausgebildet, wie im weiteren Verlauf noch näher erläutert wird. Insbesondere kann der Zwischenstoff als Einheit ausgebildet und als solche handhabbar sein. Vorteilhaft kann der Zwischenstoff papierartig und/oder vliesartig

und/oder netzwerkartig ausgebildet sein und als solcher auch eine gewisse Formstabilität aufweisen. Die ehemals bestehende Schichtenfolge wird bei der vorliegenden Erfindung, im Gegensatz zu der aus dem Stand der Technik bekannten Lösung, vorzugsweise so aufgelöst, dass der resultierende Verbundwerkstoff eine  
5 isotrope, zumindest aber eine annähernd isotrope Wärmeleitfähigkeit aufweist.

Grundlegende Merkmale und Vorteile der vorliegenden Erfindung stellen sich wie folgt dar: Zunächst liegt nach einer erfolgten Infiltration ein Werkstoff vor, der mit einem Netzwerk aus einem Füllstoffmaterial durchsetzt ist. Vorteilhaft wird ein Metall-  
10 Kupfer-Werkstoff bereitgestellt, wobei das Metall vorzugsweise Kupfer, oder aber ein kupferhaltiges Metall ist. Ein grundlegendes Merkmal der vorliegenden Erfindung wird insbesondere auch durch die besondere Ausgestaltung des Füllstoffs gebildet, vor allem auch durch dessen Modifikationen.

15 Gemäß dem ersten Aspekt der Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffs oder Verbundwerkstoffkörpers oder Verbundkörpers, bestehend aus einem kohlenstoffhaltigen Material, insbesondere einem Kohlenstoffnanomaterial, und einem metallischen Material, bereitgestellt, welches durch folgende Schritte gekennzeichnet ist:

- 20 a) Herstellen eines Schichtstapels aus zwei oder mehr Schichten, wobei wenigstens eine der Schichten in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs ausgebildet ist und wobei wenigstens eine Schicht in Form einer metallhaltigen Matrixschicht ausgebildet ist;
- b) Aufheizen des Schichtstapels auf eine bestimmte Prozesstemperatur, bei der die  
25 Matrixschicht aufgeschmolzen wird;
- c) Vollständiges Infiltrieren des Zwischenstoffs mit aufgeschmolzenem Matrixmaterial; und
- d) Abkühlen des entstandenen Verbundwerkstoffs oder Verbundwerkstoffkörpers oder Verbundkörpers.

30

Durch das erfindungsgemäße Verfahren wird ein Verbundwerkstoff oder Verbundwerkstoffkörper oder Verbundkörper hergestellt, der zunächst aus einem

kohlenstoffhaltigen Material besteht. Grundsätzlich ist die Erfindung dabei nicht auf bestimmte Materialien beschränkt. Vorteilhaft handelt es sich jedoch um Kohlenstoffnanomaterialien, wobei die Erfindung natürlich auch nicht auf bestimmte Kohlenstoffnanomaterialien beschränkt ist. Einige vorteilhafte, jedoch nicht ausschließliche Beispiele werden im weiteren Verlauf der Beschreibung näher erläutert.

Bei der zweiten Komponente des Verbundwerkstoffs handelt es sich um ein metallisches Material, wobei die Erfindung nicht auf bestimmte Metalle beschränkt ist. Vorteilhaft kann es sich um ein Metall wie beispielsweise Cu, Ag oder Au handeln. Hierbei handelt es sich um diejenigen Metalle mit der höchsten Wärmeleitfähigkeit im Periodensystem der chemischen Elemente. Jedoch ist die Erfindung nicht auf bestimmte Metalle oder Metalllegierungen beschränkt. Auch hierzu werden weitere vorteilhafte, jedoch nicht ausschließliche Beispiele im weiteren Verlauf der Beschreibung näher erläutert.

Wenn mit dem Verfahren ein Verbundwerkstoffkörper oder Verbundkörper hergestellt wird, zeichnet sich dieser vorzugsweise dadurch aus, dass er in der weiter unten im Zusammenhang mit den jeweiligen Erfindungsaspekten im Detail beschriebenen Weise ausgebildet ist. Unter einem Verbundwerkstoffkörper soll generell ein Körper mit ein oder zwei Verbundwerkstoffschichten verstanden werden. Unter einem Verbundkörper soll generell ein Körper mit mehr als zwei Verbundwerkstoffschichten verstanden werden.

Vorteilhaft kann das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffs oder Verbundwerkstoffkörpers oder Verbundkörpers aus Kohlenstoffnanomaterial und einer Cu-Legierung verwendet werden. Ein derartiger Verbundwerkstoff kann beispielsweise als Wärmesenkenmaterial eingesetzt werden, welches eine hohe Wärmeleitfähigkeit, bei einstellbarer Wärmedehnung und elektrischer Leitfähigkeit, aufweist.

Zur Durchführung des Verfahrens wird zunächst ein Schichtstapel aus zwei oder mehr Schichten hergestellt. Dabei ist wenigstens eine Schicht in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs ausgebildet. Wenigstens eine andere Schicht ist in Form einer metallhaltigen Matrixschicht ausgebildet. Grundsätzlich ist es

5 ausreichend, wenn zwei Schichten vorhanden sind, wobei jeweils eine Schicht von einem der vorgenannten Typen verwendet wird. Vorteilhaft wird jedoch ein Schichtstapel mit mehr als zwei Schichten hergestellt. Bei einem Schichtstapel mit drei Schichten beispielsweise sind zwei Schichten desselben Typs, und eine Schicht des jeweils anderen Typs vorgesehen. Bei Schichtstapeln von vier oder mehr

10 Schichten sind vorzugsweise zwei oder mehr Schichten des einen Typs und zwei oder mehr Schichten des jeweils anderen Typs vorgesehen.

Vorteilhaft kann dabei vorgesehen sein, dass der Schichtstapel aus mehr als zwei Schichten hergestellt wird, wobei die Schichten in Form eines kohlenstoffhaltigen

15 Zwischenstoffs und in Form einer metallhaltigen Matrix alternierend gestapelt werden.

Wenigstens eine der Schichten ist als Schicht in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs ausgebildet.

20

Vorteilhaft kann/können die Schicht(en) in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs als zusammenhängende Netzwerkstruktur ausgebildet sein. Dabei handelt es sich vorzugsweise um eine lagerfähige und handhabbare Zwischenstufe, bei der die einzelnen Partikel – insbesondere mechanisch – miteinander verbunden

25 sind.

Ein derart ausgebildeter Zwischenstoff, beziehungsweise eine derart ausgebildete Schicht eines Zwischenstoffs weist den Vorteil auf, dass sie in ihrer Gestalt und in ihrem inneren Zusammenhang während der Infiltration zumindest zeitweilig im

30 wesentlichen erhalten bleibt. Aus einer Vorform und Metall wird dann im Prinzip eine metallinfiltrierte Vorform mit gegebenenfalls Restmaterial.

Vorteilhaft kann der kohlenstoffhaltige Zwischenstoff in jeder Schicht in Gestalt einer zusammenhängenden plattenförmigen Vorform vorliegen. Vorteilhaft wird gemäß der vorliegenden Erfindung mit einem zuvor definiert hergestellten kohlenstoffhaltigen Zwischenstoff gearbeitet. Dabei kann es sich beispielsweise um zuvor hergestellte  
5 papierartige Strukturen und/oder filzartige Strukturen und/oder vliesartige Strukturen und/oder – insbesondere dickere - dreidimensionale Netzwerke handeln. Vorteilhaft kann der Zwischenstoff auch in Gestalt von so genanntem „Bucky Paper“ ausgebildet sein. Ein „Bucky Paper“ ist generell ein aus Kohlenstoffnanomaterial, beispielsweise aus Nanotubes, hergestelltes Vlies, das ähnlich dem Papierherstellungsprozess  
10 durch Abfiltrieren einer Lösung, etwa einer CNT-haltigen Lösung, auf einem Filter zurückbleibt und nach Trocknung vom Filter abgezogen werden kann. Der Zwischenstoff kann somit vorteilhaft in Form einer so genannten „Non-Woven“-Struktur ausgebildet sein.

15 Dabei können die Zwischenstoffe insbesondere binderfrei sein. Dadurch kann ein Verbundwerkstoff erhalten werden, in dem die Mehrlagenstruktur sichtbar erhalten bleibt, und zwar trotz zugleich vollständiger Infiltration.

Selbstverständlich ist die Erfindung nicht auf bestimmte Zwischenstoffe beschränkt.  
20 Einige vorteilhafte, jedoch nicht ausschließliche Beispiele werden im weiteren Verlauf der Beschreibung näher erläutert.

Das erfindungsgemäße Verfahren weist vorteilhaft auch den Schritt auf, dass in einem vorgelagerten Schritt die wenigstens eine Schicht in Form eines  
25 kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs zunächst erst hergestellt wird. Hierzu kann beispielsweise vorgesehen sein, dass die Schicht(en) in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs aus wenigstens einem kohlenstoffhaltigen Ausgangsstoff, insbesondere aus wenigstens einem aus einem Kohlenstoffnanomaterial bestehenden Ausgangsstoff, hergestellt wird/werden.

Dabei ist die Erfindung nicht auf bestimmte Ausgangsstoffe beschränkt. Nachfolgend werden verschiedene vorteilhafte, jedoch nicht ausschließliche Beispiele geeigneter Ausgangsstoffe beschrieben.

- 5 Beispielsweise kann es sich bei dem Ausgangsstoff um Kohlenstoffnanofasern (CNF: Carbon Nanofiber) handeln. Hierbei handelt es sich in der Regel um nicht-hohle, aus Graphenschichten aufgebaute Nanofasern auf Kohlenstoffbasis mit typischen geometrischen Abmessungen von 50 bis 500 nm im Durchmesser und mit einer Länge von 1-500  $\mu\text{m}$ . Die CNF können in verschiedenen Modifikationen (Anordnung  
10 der graphitischen Ebenen) vorliegen. Zu nennen sind beispielsweise folgende Modifikationen:

PL (Platelet type): Die Graphenschichten sind senkrecht zur Faserachse gestapelt.

- 15 HB (Herringbone type): Die Graphenschichten sind gewinkelt zur Faserachse gestapelt, und im Querschnitt als Fischgrätmuster erkennbar.

SC (Screw type): Diese Modifikation basiert auf dem Herringbone-Typ, weist jedoch eine zusätzliche Verdrillung in Schraubenform auf.

20

Beispielsweise kann es sich bei dem Ausgangsstoff um Kohlenstoffnanoröhrchen (CNT: Carbon Nanotube) handeln. Hierbei handelt es sich in der Regel um Nanoröhrchen auf Kohlenstoffbasis, die typische geometrische Abmessungen von 1-50 nm im Durchmesser und einer Länge von 1-100  $\mu\text{m}$  aufweisen. Die CNT können  
25 in verschiedenen Modifikationen vorliegen. Zu nennen sind beispielsweise folgende Modifikationen:

SW (Single Walled): Die Nanoröhrchen bestehen aus einem Graphitrohr.

- 30 DW (Double Walled): Die Nanoröhrchen bestehen aus 2 ineinander geschachtelten Graphitrohrchen

MW (Multi Walled): Die Nanoröhrchen bestehen aus mehreren ineinander geschachtelten Graphitröhrchen

Der Ausgangsstoff kann aus einem einzigen dieser Materialien, oder aber aus  
5 beliebigen Kombinationen der Materialien und Modifikationen bestehen. Wichtig ist lediglich, dass der Ausgangsstoff überwiegend, bevorzugt ausschließlich aus Kohlenstoffnanomaterial besteht. Um dies zu unterstreichen, wird der Ausgangsstoff im Folgenden auch mit CNX-Y bezeichnet. Die Bezeichnung CNX-Y steht dabei als Abkürzung für CNF und/oder CNT mit den verschiedensten oben genannten  
10 Erscheinungsformen und Modifikationen. Dabei steht das X für die Art des Kohlenstoffnanomaterials, also Kohlenstoffnanofasern (CNF) oder Kohlenstoffnanoröhrchen (CNT), wobei natürlich auch Mischungen zwischen CNF und CNT enthalten und mit umfasst sind. Y steht für die Modifikation des Kohlenstoffnanomaterials, sowie natürlich auch für Mischungen aus den  
15 verschiedenen Erscheinungsformen Y (im Fall von CNF: PL, HB, SC und Fall von CNT: SW, DW, MW).

Die verschiedenen Ausgangsstoffe können zusätzlich mit einer  
Oberflächenmodifikation A und/oder Beschichtung B versehen werden.  
20

Unter einer Oberflächenmodifikation A sind beispielsweise Funktionalisierungen wie C-H, C-OH, C-OOH, eine Hydrierung (nasschemisch oder über die Gasphase), ein Ausheizen bei Temperaturen größer 1200°C, eine Graphitierung bei Temperaturen um 2900°C, eine Behandlung mit Argon-, Stickstoff-, Sauerstoff- oder  
25 Wasserstoffplasma beziehungsweise deren Gemenge, oder dergleichen zu verstehen.

Unter einer Beschichtung B ist beispielsweise die Beschichtung mit wenigstens einem benetzungsfördernden Element (was im weiteren Verlauf der Beschreibung  
30 noch näher erläutert wird) beziehungsweise einer Karbidschicht, Borid, Silizid oder Nitridschicht des benetzungsfördernden Elements zu verstehen. Eine Beschichtung

muss nicht als deckende Schicht vorliegen, sollte aber vorteilhaft eine Flächenbelegung von zumindest 10%, vorteilhaft von zumindest 25% aufweisen.

5 Auch wenn vorstehend der Begriff „Oberflächenmodifikation“ beziehungsweise „Beschichtung“ in der Einzahl verwendet wird, so schließt dies natürlich nicht aus, dass es sich dabei auch um mehrere „Oberflächenmodifikationen“ beziehungsweise „Beschichtungen“ handeln kann, die nacheinander appliziert werden.

10 Aus dem Ausgangstoff wird zunächst eine Schicht in Form eines Zwischenstoffs hergestellt. Dabei ist die Erfindung nicht auf bestimmte Zwischenstoffe beschränkt. Nachfolgend werden verschiedene vorteilhafte, jedoch nicht ausschließliche Beispiele geeigneter Zwischenstoffe beschrieben.

15 Bevorzugt ist der Zwischenstoff für die weitere Verarbeitung als Einheit handhabbar, im Gegensatz zu einer reinen Pulverschüttungsschicht. Die hieraus resultierenden Vorteile werden im weiteren Verlauf noch näher erläutert.

20 Beispielsweise kann der Zwischenstoff „papierartig“, beispielsweise als so genanntes „Bucky Paper“, ausgebildet sein. Bei einer derartigen Ausgestaltung handelt es sich um ein kohlenstoffhaltiges Netzwerk aus CNX-Y/CNX-Y-AB mit losen, eventuell leicht verschlauften, Kontakten zwischen den einzelnen CNX-Y/CNX-Y-AB mit der Möglichkeit einer bevorzugter Ausrichtung der CNX-Y/CNX-Y-Z in x-y Richtung und einer Dicke des Papiers in der Größenordnung 50 bis 500  $\mu\text{m}$ . Die Dichte des Papiers ist einstellbar im Bereich 0,15 bis 0,4  $\text{g}/\text{cm}^3$ .

25 Beispielsweise kann der Zwischenstoff auch „filzartig“ ausgebildet sein. Bei einer derartigen Ausgestaltung handelt es sich um ein kohlenstoffhaltiges Netzwerk aus CNX-Y/CNX-Y-AB mit losen, eventuell leicht verschlauften, Kontakten zwischen den einzelnen CNX-Y/CNX-Y-AB und mit der Möglichkeit einer bevorzugter Ausrichtung  
30 der CNX-Y/CNX-Y-AB in x-y Richtung. Die Dicke z des Filzes liegt typischerweise über 0,5mm. Die Dichte des Filzes ist einstellbar im Bereich 0,15 bis 0,4  $\text{g}/\text{cm}^3$ .

Der Zwischenstoff kann auch als dreidimensionales Netzwerk ausgebildet sein. Hierbei handelt es sich um ein kohlenstoffhaltiges Netzwerk aus CNX-Y/CNX-Y-AB mit de facto gefestigten Verschlaufungen zwischen den einzelnen CNX-Y/CNX-Y-AB. Die Dichte des dreidimensionalen Netzwerkes ist einstellbar im Bereich 0,05 bis 0,4 g/cm<sup>3</sup>.

Alle Zwischenstoffe CNX-Y können nachträglich mit einer wie oben beschriebenen Oberflächenmodifikation A und/oder einer wie oben beschriebenen Beschichtung B versehen werden.

Wenigstens eine der Schichten ist als Schicht in Form eines metallischen Matrixmaterials ausgebildet. Hierbei kann es sich um wenigstens ein Reinmetall oder wenigstens eine Metalllegierung handeln. Selbstverständlich ist die Erfindung nicht auf bestimmte Matrixmaterialien beschränkt. Einige vorteilhafte, jedoch nicht ausschließliche Beispiele werden nachfolgend näher erläutert.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann dabei auch den vorgelagerten Schritt umfassen, dass das metallische Matrixmaterial beziehungsweise die daraus bestehende Schicht zunächst hergestellt wird.

Ein metallisches Matrixmaterial aus Reinmetall kann beispielsweise aus wenigstens einem Metall wie Cu, Ni, Co, Ag, Au, Mg und Al bestehen.

Eine Legierung aus metallischem Matrixmaterial (Matrix L) kann zumindest aus 80 Gewichtsprozent aus dem Metall bestehen. Der Rest kann von einem oder mehreren Legierungselementen und/oder intermediären Phasen gebildet werden. Als Legierungselemente kommen beispielsweise Elemente/Verbindungen in Frage, die die Benetzung zwischen CNX-Y/CNX-Y-AB fördern und/oder den Schmelzpunkt der Matrix erniedrigen.

Matrix Metall sowie auch Matrix Legierungen können beispielsweise als Folie, Blech oder Platte zum Einsatz kommen.

- Nachdem ein geeigneter Schichtenstapel hergestellt worden ist, wird dieser dem „Verbundschritt“ unterworfen. Dazu wird der Schichtstapel zunächst auf eine bestimmte Prozesstemperatur aufgeheizt, bei der die Matrixschicht aufgeschmolzen wird. Dabei ist die Erfindung nicht auf bestimmte Temperaturwerte beschränkt. Diese ergeben sich vielmehr je nach verwendetem Material. Einige vorteilhafte, jedoch nicht ausschließliche Beispiele hierzu werden im weiteren Verlauf der Beschreibung näher erläutert.
- 10 Nachdem der Schichtstapel auf die Prozesstemperatur aufgeheizt wurde, wird der Zwischenstoff infiltriert. Dabei kann die Infiltration grundsätzlich durch ein beliebiges Verfahren erfolgen. Insbesondere wird jedoch ein Verfahren eingesetzt, welches das Aufbringen von Temperatur und Druck kontrolliert ermöglicht. Dies wird im weiteren Verlauf der Beschreibung noch näher erläutert.
- 15 Erfindungsgemäß ist vorgesehen, dass der Zwischenstoff vollständig infiltriert wird. Die Infiltration sieht dabei vor, dass die aufgeschmolzene Matrixschicht beziehungsweise das aufgeschmolzene Matrixmaterial der Matrixschicht in den Zwischenstoff hinein infiltriert.
- 20 Ein vollständiges Infiltrieren besagt dabei, dass der Zwischenstoff vollständig infiltriert ist, was bedeutet, dass alle Poren des Zwischenstoffs mit aufgeschmolzenem Material gefüllt sind.
- 25 Beispielsweise kann vorgesehen sein, dass genau soviel Matrixmaterial verwendet wird, dass dieses von der Menge her genau ausreicht, um den Zwischenstoff zu infiltrieren. Natürlich kann auch vorgesehen sein, dass mehr Matrixmaterial vorhanden ist, als für das Infiltrieren des Zwischenstoffs eigentlich erforderlich wäre. In einem solchen Fall wird der hergestellte Verbundwerkstoff beziehungsweise ein
- 30 aus diesem hergestellter Verbundwerkstoffkörper dadurch gekennzeichnet sein, dass die Schichten Verbundwerkstoff jeweils voneinander durch eine dünne Restschicht (nicht infiltrierten) Matrixmetalls beabstandet sind.

- Die vollständige Infiltration der kohlenstoffhaltigen Schicht mit Matrixmetall stellt gegenüber der Lehre der JP 2006001232 A einen wesentlichen Unterschied dar: Wird die Schicht nicht vollständig infiltriert, so bleibt sie porig und damit
- 5 bruchempfindlich und thermisch nur unzureichend leitfähig. Soll sie auf jeden Fall vollständig infiltriert werden, so wird in der Regel immer mit einem Matrixmetallüberschuss gearbeitet, was dann zur Folge hat, dass Matrixmetall nach der Infiltration auf beiden Seiten des gebildeten Verbundwerkstoffes übrig bleibt. In einem Vielschicht-Stapel bedeutet dies, dass zwischen einzelnen Lagen
- 10 Verbundwerkstoff immer noch (wenn auch sehr dünne) Lagen des ursprünglichen Matrixmaterials übrig bleiben können. Es charakterisiert das erfindungsgemäße Verfahren, dass im gebildeten Verbundwerkstoffkörper diese Mehrlagenstruktur sichtbar bleiben kann.
- 15 Die Infiltration eines Stapels aus vielen dünnen Schichten stellt weiterhin einen wesentlichen Unterschied zur Lehre gemäß der US 6,649,265 B1 dar, bei der nur ein Körper infiltriert wird. Gemäß der vorliegenden Erfindung liegt, wie weiter unten noch näher erläutert wird, der Schichtdickenbereich für Kohlenstoffschicht vorteilhaft im Bereich von 10µm bis 500µm, bevorzugt 25µm bis 250µm, besonders bevorzugt 50
- 20 bis 150µm. Somit stellt die erfindungsgemäße Lösung auch einen wesentlichen Unterschied zu solchen Lösungen dar, bei denen mit einer Pulverschüttung gearbeitet wird.
- Nach Abschluss der Infiltration wird der entstandene Verbundwerkstoff abgekühlt.
- 25 Anschließend kann dieser zu einem Verbundwerkstoffkörper oder Verbundkörper verfestigt werden. Eine nachfolgende Weiterbehandlung mit oder ohne Wärmebeaufschlagung ist ebenso denkbar wie die Formgebung durch Umformen (beispielsweise Extrudieren, Walzen oder dergleichen) und/ oder subtraktive Formgebung (beispielsweise spanende Bearbeitung, Läppen, Polieren, Ätzen oder
- 30 dergleichen) und das Auftragen anderer Materialien (beispielsweise durch physikalisches oder chemisches Abscheiden aus der Dampfphase und/ oder elektrolytische Abscheidung oder dergleichen).

Vorteilhaft kann die Schichtstruktur der Schichten des Schichtstapels für einen definierten Zeitraum vollständigen Aufschmelzens erhalten bleiben.

- 5 Wie weiter oben bereits erläutert wurde, kann die Schicht in Form eines Zwischenstoffs vorteilhaft eine netzwerkartige Struktur aufweisen. Eine solche formschlüssige Struktur der kohlenstoffhaltigen Materialien kann bei der Infiltration beispielsweise in Form von Papier, Vlies oder dergleichen vorliegen. Während Pulvermaterialien bei der Infiltration „ausweichen“ können, und es somit zu
- 10 pulverreichen und schmelzereichen Unterzonen kommen kann, hängen die kohlenstoffhaltigen Materialien bei der vorliegenden Erfindung in einer Ebene netzwerkartig zusammen. Die Schmelze dringt lediglich in die schon vorhandenen Poren und Zwischenräume ein, die sich dabei allenfalls weiten.
- 15 Ein wesentlicher Aspekt des erfindungsgemäßen Verfahrens ist durch den Prozess der vollständigen Infiltration gegeben.

Beispielsweise kann der Infiltrationsprozess in zwei Prozessteile eingeteilt werden.

- 20 Ein erster Prozessteil sieht beispielsweise vor, dass ein geringer Druck bei der Infiltration herrscht oder eingestellt wird, wobei das Matrixmetall nicht aus dem Bereich zwischen den kohlenstoffhaltigen Zwischenschichten herausgedrückt wird. Auf diese Weise bleibt das Matrixmetall zur vollständigen Infiltration vorrätig, bis diese abgeschlossen ist.
- 25 Ein zweiter Prozessteil sieht beispielsweise einen hohen Druck vor, der nach erfolgter vollständiger Infiltration herrscht oder eingestellt wird, wodurch Restbestandteile an Matrixmetall aus dem Verbundwerkstoff entfernt werden beziehungsweise entfernt werden können. Grundlegendes Merkmal dabei ist der
- 30 erste Prozessteil, der die Infiltration von Schichten ohne Auflösen der Schichtstruktur ermöglicht. Der vorgenannte zweite Prozessteil kann insbesondere optional angewendet werden.

Mittels des erfindungsgemäßen Verfahrens lassen sich beispielsweise Zwischenstoffe aus Kohlenstoffnanomaterial und Cu-Folien durch abwechselnde Schichtung und anschließendes Aufschmelzen des Cu unter Druck erzeugen.

- 5 Daraus entstehende Verbundwerkstoffe beziehungsweise Verbundwerkstoffkörper oder Verbundkörper sind in mehrfacher Ausgangsschichtung Cu-Nfach(Zwischenstoff-Cu-Zwischenstoff)-Cu ( $N \geq 1$ ) beispielsweise geeignet für die Anwendung als Wärmesenke für Wärmequellen jeglicher Art. Besonders geeignet sind diese Wärmesenken zur epitaxienseitigen Kontaktierung von
- 10 Halbleiterbauelementen, insbesondere Laserdioden, wobei bevorzugt der thermische Ausdehnungskoeffizient des Verbundwerkstoffkörpers dem des Halbleiterbauelementes zumindest näherungsweise entspricht. Darüber hinaus sind Verbundwerkstoffkörper in einfacher Ausgangsschichtung Cu-Zwischenstoff-Cu besonders geeignet für die Anwendung als elektrische Leiterfolien/Kontaktbleche,
- 15 beispielsweise für die substratseitige elektrische Kontaktierung von Halbleiterbauelementen, insbesondere Laserdioden.

- Die Eigenschaften des Verbundwerkstoffs können besonders gut eingestellt werden, beispielsweise der CTE (Wärmedehnung) durch Anteile von CNF-PL und CNF-HB im
- 20 verwendeten Zwischenstoff.

- Eine Benetzung von CNX (Sammelbegriff für Carbon Nanotubes = CNT und Carbon Nanofibers = CNF) kann beispielsweise durch Cu-Schmelzen mittels Legierungsmetallen, beziehungsweise durch Vorbeschichtung, erfolgen.

25

- Das erfindungsgemäße Verfahren wird nun zur Verdeutlichung anhand eines Beispiels erläutert. Zunächst erfolgt ein Stapeln von Zwischenstoff CNX-Y und/oder CNX-Y-AB und dem Matrix Metall und/oder der Matrix Legierung, beziehungsweise ein alternierendes Stapeln. Anschließend folgt ein Prozess, der das Aufschmelzen
- 30 (beispielsweise ein Heißpressen mit Aufschmelzen) des Matrix Metalls beziehungsweise der Matrix Legierung und Infiltration durch Druckaufgabe des Zwischenstoffes beinhaltet.

Das Ergebnis ist ein hochwärmeleitfähiger Werkstoff (beispielsweise größer 300 W/m/K zumindest in eine Raumrichtung) mit definiertem, niedrigen thermischen Ausdehnungskoeffizienten (CTE= Coefficient of Thermal Expansion) von  
5 beispielsweise kleiner 12 ppm/K, vorzugsweise 6 – 8 ppm/K (zumindest in einer Raumrichtung).

Zur Realisierung können folgende Schritte durchgeführt werden:

10 Herstellung der entsprechenden Ausgangsstoffe, gegebenenfalls mit einer Oberflächenmodifikation A und/oder Beschichtung B;

Herstellung der entsprechenden Zwischenstoffe, gegebenenfalls mit einer entsprechenden Oberflächenmodifikation A und/oder Beschichtung B.

15

Ziel der Oberflächenmodifikation A und/oder Beschichtung B ist durch Benetzung eine möglichst schnelle (dabei jedoch vollständige) Infiltration zu ermöglichen. Die Beschichtung B kann aber auch in Kombination mit einer Matrix Legierung die Funktion haben, zu starke Reaktionen zwischen dem CNX-Y Zwischenstoff und den  
20 Legierungselementen in der Matrix Legierung zu unterbinden. Als dritte Funktion erfüllt die Oberflächenmodifikation A beziehungsweise die Beschichtung B die Funktion, eine gute thermische beziehungsweise mechanische Anbindung zwischen Matrix Material beziehungsweise Matrix Legierung und den CNX-Y beziehungsweise CNX-Y-AB zu ermöglichen.

25

Die Herstellung des Verbundwerkstoffes erfolgt durch Anordnung von Matrix und Zwischenstoff, beispielsweise in alternierender Weise, gefolgt von der Infiltration des Zwischenstoffes unter Druck und Temperatur. Der Verbundwerkstoff kann beispielsweise als Wärmesenke für Laserdioden eingesetzt werden.

30

Generell besteht eine schlechte Benetzbarkeit von Kohlenstoffmaterialien mit Kupfer. Das gilt beispielsweise auch für Graphitoberflächen, die Cu-Schmelztropfen

abweisen. Das Problem wird durch die große spezifische Oberfläche von CNX noch verstärkt. Durch die schlechte Benetzbarkeit ist ein vollständiges Infiltrieren poröser, kohlenstoffbasierter Strukturen schwierig. Selbst wenn die Infiltration gelingt, ist eine wärmeleitende Kontaktierung der einzeln für sich sehr gut wärmeleitenden Matrix  
5 Metalle und CNX nicht gewährleistet.

Abhängig vom Matrix Metall beziehungsweise der Matrix Legierung kann es zum Auflösen der CNX in der Schmelze der Matrix Legierung kommen, wenn der Infiltrationsprozess zu lange andauert. Die Dauer des Infiltrationsprozesses hängt  
10 wiederum von der Benetzbarkeit ab. Neben der Benetzbarkeit ist die Gesamtporosität, die Porengrößenverteilung und die Dicke des zu infiltrierenden Zwischenstoffes entscheidend, wie gut, vollständig und mit wärmeleitenden Kontakten die Matrix-Schmelze die CNX-Struktur durchdringt. Bei guter Benetzbarkeit kann prinzipiell der Lotuseffekt (schlechte Netzung plus Nanostruktur =  
15 besonders stark abweisender Effekt) umgekehrt werden in einen die Schmelze in die Poren „einsaugenden“ Kapillareffekt. Alle diese Probleme können mit dem erfindungsgemäßen Verfahren und dem erfindungsgemäßen Verbundwerkstoff nunmehr vermieden werden.

20 Beispielsweise lässt sich die vorliegende Erfindung auch durch ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffes von Kohlenstoff in einem Matrix Metall beziehungsweise einer Matrix Legierung, beschreiben, das folgende Schritte aufweist: Herstellung der entsprechenden Ausgangsstoffe CNX-Y, gegebenenfalls mit einer Oberflächenmodifikation A und/oder Beschichtung B; Herstellung der  
25 entsprechenden Zwischenstoffe aus CNX-Y, gegebenenfalls mit einer entsprechenden Oberflächenmodifikation A und/oder Beschichtung B; Herstellung des Verbundwerkstoffes durch Anordnung von Matrix Metal oder Matrix Legierung und Zwischenstoff CNX-Y-AB, beispielsweise in alternierender Weise, gefolgt von der Infiltration des Zwischenstoffes unter Druck und Temperatur; sowie die  
30 Abkühlung des durch Infiltration des Zwischenstoffes entstandenen Gefüges und seine Verfestigung zu einem Verbundwerkstoffkörper. Eine zusätzliche Wärmebehandlung kann noch zur Homogenisierung des Gefüges bzw. zur

Ausbildung von entsprechenden Grenzflächen angewendet werden. Ebenso kann eine Nachverdichtung durch einen Press-, Streck- oder Umformprozess erfolgen.

Vorteilhaft kann die wenigstens eine Schicht in Form eines kohlenstoffhaltigen  
5 Zwischenstoffs und/oder die wenigstens eine Schicht in Form einer metallhaltigen  
Matrix und/oder der kohlenstoffhaltige Ausgangsstoff bei ihrer Herstellung und/oder  
bei der Herstellung des Schichtstapels und/oder vor dem Aufheizen des  
Schichtstapels auf die Prozesstemperatur mit einem benetzungsfördernden Material  
versehen werden. Als Benetzungsfördernde Elemente können beispielsweise, jedoch  
10 nicht ausschließlich, die Elemente aus der 3., 4., 5. und 6. Nebengruppe sowie der  
Selten-Erd-Metalle des Periodensystems der chemischen Elemente, Silizium und/  
oder Bor verwendet werden, vorzugsweise die Refraktärmetalle (4., 5. und 6.  
Nebengruppe = Ti, Zr, Hf; V, Nb, Ta; Cr, Mo, W). Die benetzungsfördernden Metalle  
können mit dem Kohlenstoff teilweise reagieren. Im Verbundwerkstoff können  
15 Reaktionsprodukte bis zu 10 Volumenprozent vorliegen.

Vorzugsweise kann/ können die wenigstens eine Schicht in Form eines  
kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs und/oder die wenigstens eine Schicht in Form  
einer metallhaltigen Matrix Schichtdicken im Bereich von 10µm bis 500µm, bevorzugt  
20 25µm bis 250µm, besonders bevorzugt 50 bis 150µm aufweisen.

Vorteilhaft kann der Schichtstapel mit einer Heizrate von wenigstens 10 K/min,  
bevorzugt größer 20 K/min, besonders bevorzugt größer 50 K/min aufgeheizt  
werden. Beispielsweise kann vorgesehen sein, dass die Anordnung aus Matrix  
25 Metall/Legierung und Zwischenstoff CNX-Y-AB in ein entsprechendes Werkzeug  
oder in eine entsprechende Form eingelegt und mit einer Heizrate von zumindest 10  
K/min, bevorzugt über 20 K/min, besonders bevorzugt über 50 K/min hochgeheizt  
wird.

30 In weiterer Ausgestaltung kann der Schichtstapel auf eine Prozesstemperatur  
aufgeheizt werden, die dem 1,02- bis 1,3-fachen der Schmelztemperatur des  
Materials der metallhaltigen Matrixschicht entspricht. Beispielsweise kann

vorgesehen sein, dass die Anordnung aus Matrix Metall/Legierung und Zwischenstoff CNX-Y-AB auf eine Endtemperatur, die 1,02 bis 1,3 fachen der Schmelztemperatur des Matrix Metalls beziehungsweise der Matrix Legierung entspricht, hochgeheizt wird.

5

Vorteilhaft kann die Infiltration des Zwischenstoffs zumindest zeitweilig bei einem bestimmten Druck erfolgen, der im Bereich von 0,1 bis 2000 MPa, bevorzugt im Bereich von 0,1 bis 100 MPa, besonders bevorzugt im Bereich von 0,1 bis 20 MPa liegt. Vorzugsweise kann der Druck ab dem Zeitpunkt des Erreichens der

10

Prozesstemperatur ausgeübt werden. Somit kann beispielsweise vorgesehen sein, dass nach Erreichen der Schmelztemperatur beziehungsweise der gewünschten Endtemperatur Druck ausgeübt wird, der im Bereich 0,1 bis 2000 MPa liegen kann, bevorzugt im Bereich 0,1 bis 100 MPa liegt, besonders bevorzugt im Bereich zwischen 0,1 und 20 MPa.

15

Vorteilhaft kann der Druck ab dem Zeitpunkt des Erreichens der Prozesstemperatur ausgeübt werden.

20

Vorzugsweise kann der Druck für eine vorgegebene Zeitdauer ausgeübt werden, die im Bereich von 0,1 bis 100 Minuten, bevorzugt von 0,1 bis 30 Minuten, besonders bevorzugt von 0,1 bis 10 Minuten liegt. Beispielsweise kann vorgesehen sein, dass der Druck bei der Endtemperatur für eine Zeit von 0,1 bis 100 Minuten, bevorzugt 0,1 bis 30 Minuten, besonders bevorzugt von 0,1 bis 10 Minuten aufrechterhalten wird.

25

Gegebenenfalls kann der Druck auch noch zumindest zeitweilig während des Abkühlvorgangs aufrechterhalten werden.

30

In weiterer Ausgestaltung kann die Abkühlung des Verbundwerkstoffs mit einer Abkühlrate von größer/gleich 5 K/min durchgeführt wird. Beispielsweise kann vorgesehen sein, dass nach der Haltezeit bei der Endtemperatur eine Abkühlung mit einer Abkühlrate von zumindest 10 K/min erfolgt.

Vorzugsweise kann zumindest der Schritt der Infiltration des Zwischenstoffs unter Vakuum, oder unter einem Inertgas, oder unter Wasserstoff oder unter Luft stattfinden. Beispielsweise kann der Infiltrationsprozess bevorzugt unter Vakuum stattfinden. Abhängig von dem gewählten Matrix Metall oder der Matrix Legierung  
5 kann er auch unter Inertgas oder Wasserstoff, und in besonderen Fällen auch unter Luft stattfinden.

Nachfolgend werden verschiedene Details beschrieben, mittels derer die vorliegende Erfindung vorteilhaft weitergebildet werden kann.

10

Beispielsweise können als metallische Matrixschicht Cu-Legierungs-Folien mit Anteil Ti, Cr u./o. Mo verwendet werden. Diese verbessern die Benetzbarkeit von Kohlenstoff-Cu-Grenzflächen. Dies könnte ausreichen, um die dünnen Zwischenstoffe mit der Schmelze zu durchdringen und auch die Wärmeleitung  
15 zwischen Kohlenstoff und Kupfer zu gewährleisten.

Alternativ könnte aus derselben Motivation heraus eine vorherige Beschichtung der CNX mit einer metallischen Schicht erfolgen, die beim Herstellprozess in ein Karbid übergeführt werden können. Ebenso ist aber direkte Abscheidung von Metall-  
20 Karbiden, Metall-Boriden, Metall-Siliziden und/oder Metall-Nitriden denkbar.

Anschließend erfolgt die Herstellung von Zwischenstoff aus den beschichteten CNX, und Verwenden reiner Cu-Folien als metallisches Matrixmaterial.

Übergangsschichten könnten mit Ti, Cr und/oder Mo versehen sein. Eventuell könnte eine weitere Übergangsschicht Cu sein, welches durch Colloidal Microwave

25 Processing (=CMP) oder andere Beschichtungsprozesse auf CNX aufgebracht wird.

Hier ist dann die Benetzung über die auf den CNX lokalisierten benetzungsfördernden Metalle gewährleistet.

Alternativ wäre ein Beschichten des aus reinen CNX hergestellten Zwischenstoffs  
30 (Methoden alternativ galvanisch / Physical Vapour Deposition = PVD / Chemical Vapour Deposition = CVD) mit Ti, Cr und/oder Mo möglich, sowie einer anschließenden Kombination mit reinen Cu-Folien.

Auch ist ein Kombinieren von den oben genannten Beschichtungen der CNX und/oder Zwischenstoffe mit Verwendung von Cu-Legierungsfolien denkbar.

- 5 Die Zwischenstoffe können durch teilweises Ersetzen des CNT-Y-Anteils durch CNF-Y variiert. Hierdurch wird Porenstruktur und Benetzbarkeit beeinflusst.

Die Dicke des Zwischenstoffs kann vorteilhaft zwischen 50µm und 250µm variiert werden.

10

Durch die beiden vorgenannten Punkte wird die genaue Einstellung des CTE (Wärmedehnverhaltens) des Zwischenstoffs, aber auch des Verbundwerkstoffs, ermöglicht.

- 15 Eine Anpassung der Porenstruktur des Zwischenstoffs und der Oberflächenfunktionalisierung kann durch Verwenden unterschiedlicher Lösemittel bei der Herstellung erreicht werden. Hierdurch kann Einfluss auf das Infiltrationsverhalten beim Heißpressen mit der Cu-haltigen Folie und auch auf das Benetzungsverhalten genommen werden. Man spricht von nasschemischer
- 20 Funktionalisierung. In der Tendenz sind unpolare Oberflächengruppen auf den CNX förderlich für die Benetzung mit Metallschmelzen. Direkt nach üblicher Herstellung sind jedoch die Oberflächen der CNX mit sauerstoffhaltigen (und damit polaren Gruppen) abgesättigt.

- 25 Die CNX können zur Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit im Verbundwerkstoff zuvor bei Temperaturen von 1000°C bis 3000°C ausgeheizt werden. Dabei wird die kristalline Struktur der Graphenschichten perfektioniert, Fehlstellen heilen aus, amorphe Restanteile wandeln um. Dies ist der Grund für die verbesserte Elektronen- und Wärmeleitung. Zudem können auch polare Oberflächengruppen beziehungsweise
- 30 der chemisch gebundene oberflächliche Sauerstoff minimiert werden.

Durch die Verwendung von binder- und tensidfreiem Zwischenstoff wird eine deutlich bessere Benetzbarkeit und Wärmeleitung erreicht als bei binder- oder tensidhaltigen Systemen.

- 5 Gemäß einem zweiten Aspekt der Erfindung wird ein Verbundwerkstoff bereitgestellt, aufweisend einen kohlenstoffhaltigen Füllstoff, der insbesondere aus einem Kohlenstoffnanomaterial gebildet ist, wobei der Verbundwerkstoff von dem kohlenstoffhaltigen Füllstoff durchsetzt ist, und weiterhin aufweisend einen metallhaltigen Matrixwerkstoff, der aus wenigstens einem reinen Metall oder
- 10 wenigstens einer Metalllegierung gebildet ist, wobei der metallhaltige Matrixwerkstoff vollständig im Füllstoff infiltriert ist.

Der Verbundwerkstoff wird vorteilhaft mittels eines wie vorstehend beschriebenen erfindungsgemäßen Verfahren hergestellt, so dass bezüglich der Ausgestaltung,

15 Zusammensetzung und Funktionsweise des Verbundwerkstoffs zunächst auf die vorstehenden Ausführungen zum erfindungsgemäßen Verfahren vollinhaltlich Bezug genommen und verwiesen wird.

Der Verbundwerkstoff besteht zunächst aus einem kohlenstoffhaltigen Füllstoff,

20 wobei der Verbundwerkstoff von dem Füllstoff durchsetzt ist. Beispielsweise kann der Verbundwerkstoff durch einen netzwerkartigen, auf Kohlenstoff basierenden Füllstoff durchsetzt sein, der aus einem Zwischenstoff in Form eines Papier/Filz/3D-Netzwerks aus den Ausgangsstoffen CNX-Y und/oder CNX-Y-AB entstanden ist.

25 Der Zwischenstoff wurde zunächst aus wenigstens einem kohlenstoffhaltigen Ausgangsstoff hergestellt. Für den Zwischenstoff kann beispielsweise ein Ausgangsstoff CNX in Form von Kohlenstoffnanoröhren oder Kohlenstoffnanofasern verwendet werden, die einen Durchmesser zwischen 8 und 50 nm beziehungsweise 50 und 500 nm aufweisen können. Weiterhin können diese eine Länge aufweisen,

30 die im Bereich zwischen 1 und 500µm liegt. Im Zwischenstoff können diese Kohlenstoffnanoröhren oder Kohlenstoffnanofasern dabei ein loses Netzwerk bilden (lose oder leicht verschlaufte Kontakte zwischen den Berührungspunkten wie bei

Papier oder Filz), oder durch den Herstellprozess als durchgängiges dreidimensionales Netzwerk mit de facto gefestigten Verschlaufungen vorliegen, dessen Poren von der Metallmatrix infiltriert sind.

- 5 Für die Ausgangsstoffe CNX kann beispielsweise folgendes gelten: CNT können mit der Struktur SW, DW oder MW zur Anwendung kommen, und die CNF können in den Strukturen PL, HB oder SC zur Anwendung kommen.

- Für die Ausgangsstoffe kann weiterhin gelten, dass die CNX-Y mit  
10 Oberflächenmodifikationen A und/oder Beschichtungen B zur Anwendung kommen können.

- Die Oberflächenmodifikation A kann dabei eine Funktionalisierung durch C-H, C-OH, C-OOH, eine Hydrierung (jeweils nasschemisch oder über die Gasphase), ein  
15 Ausheizen bei Temperaturen größer 1200°C, eine Graphitierung bei Temperaturen um 2900°C, eine Plasmabehandlung (Stickstoff, Wasserstoff, Sauerstoff, Argon oder deren Mischungen) oder dergleichen beinhalten.

- Die Beschichtung B kann dabei beinhalten eine Beschichtung mit einer  
20 Benetzungsfördernden Schicht (hierzu kommen die weiter oben angeführten Elemente in Betracht); Beschichtungen, die eine Reaktion mit einer Matrix Legierung unterbinden, beispielsweise mit den Karbiden der benetzungsfördernden Schichten, sowie deren hochschmelzende Nitride, Silizide und/oder Boride; Beschichtungen, die mit Verfahren wie PVD, CVD, Colloidal Microwave Processing, nasschemischen oder  
25 alternativen Verfahren aufgebracht werden. Die Beschichtungen müssen nicht notwendigerweise als vollständige Schicht vorliegen.

- Vorteilhaft kann der aus den Ausgangsstoffen CNX-Y hergestellte Zwischenstoff nachträglich einer Oberflächenmodifikation A und/oder Beschichtung B unterworfen  
30 werden, wie dies weiter oben bereits beschrieben ist. In diesem Fall erfolgt insbesondere die Beschichtung mit einem CVI Verfahren oder einem nasschemischen Verfahren.

Beispielsweise kann der Zwischenstoff CNX-Y-AB als Papier mit einer geometrischen Dicke von 50 bis 500  $\mu\text{m}$ , oder als Filz mit einer Dicke größer 500  $\mu\text{m}$ , oder als dreidimensionales Netzwerk mit einer Dicke größer 5 mm vorliegen.

5

Beispielsweise kann der Zwischenstoff CNX-Y-AB mit einer Dichte im Bereich 0,05 - 0,4  $\text{g/cm}^3$  herstellbar sein. Die Primärporengröße kann beispielsweise im Bereich 10 bis 1000 nm liegen.

10 Vorteilhaft kann/können der kohlenstoffhaltige Füllstoff und/oder der metallhaltige Matrixwerkstoff ein benetzungsförderndes Material aufweisen. Beispielsweise kann/können das/die benetzungsförderliche Metall(e) für den Matrixwerkstoff, beispielsweise eine Matrixlegierung, wenigstens ein Element aus der 4., 5. und 6. Nebengruppe des Periodensystems der chemischen Elemente, Silizium oder Bor  
15 sein. Die benetzungsfördernden Metalle können vorteilhaft mit dem Kohlenstoff reagieren. Die Reaktionsprodukte können bis zu 10 Volumenprozent im Verbundwerkstoff vorliegen. Reaktionsprodukte des Metalls, der Metall Legierung oder der benetzungsfördernden Elemente mit der verwendeten Atmosphäre können bis zu einem maximalen Anteil von 10 vol% im Verbundwerkstoff vorliegen.

20

Vorteilhaft weist das benetzungsfördernde Material ein Refraktärmetall, Silizium und/oder Bor auf.

Vorteilhaft kann vorgesehen sein, dass das benetzungsfördernde Material,  
25 beispielsweise ein Metall, derart ausgebildet ist, dass es mit dem Kohlenstoff reagiert oder reagieren kann, und dass die Reaktionsprodukte mit bis zu 10 Volumenprozent im Verbundwerkstoff vorliegen.

Vorteilhaft können etwaige Reaktionsprodukte des Metalls, der Metall Legierung oder  
30 der benetzungsfördernden Elemente mit der verwendeten Atmosphäre (z.B. Restsauerstoff) bis zu einem maximalen Anteil von 10 vol% im Verbundwerkstoff vorliegen.

Vorzugsweise kann der Verbundwerkstoff in zumindest einer Raumrichtung einen thermischen Ausdehnungskoeffizienten kleiner/gleich 12 ppm/K, vorzugsweise im Bereich von 6 bis 8 ppm/K aufweisen. Die Abkürzung „ppm“ steht dabei für „parts per million“.

In weiterer Ausgestaltung kann der Verbundwerkstoff in zumindest einer Raumrichtung eine thermische Leitfähigkeit von größer/gleich 300 W/mK, bevorzugt von größer/gleich 400 W/mK, besonders bevorzugt von größer/gleich 500 W/mK aufweisen. Bevorzugt liegt eine isotrope, zumindest aber mäßig anisotrope Wärmeleitfähigkeit vor.

Vorzugsweise kann der Verbundwerkstoff eine Dichte von größer 80%, bevorzugt von größer 90 %, besonders bevorzugt von größer als 95 % aufweisen.

Ein Verbundwerkstoff gemäß der vorliegenden Erfindung kann beispielsweise auf einem Matrix Metall und/oder einer Matrix Legierung, und einem auf Kohlenstoff basierenden Füllstoff basieren, wobei der Füllstoff in der Matrix teilweise netzwerkartig vorliegt. Der Füllstoff wird vorteilhaft über einen Zwischenstoff CNX-Y-AB hergestellt. Die netzwerkartige, auf Kohlenstoff basierende Struktur kann aus den Ausgangsstoffen Kohlenstoff Nanofasern CNF und/oder Kohlenstoff Nanoröhrchen CNT mit verschiedenen Strukturen Y und/oder weiteren kohlenstoffbasierten Materialien bestehen, die in weiterer Folge zu einem Zwischenstoff in Form von Papier, Filz oder 3-D-Netzwerk weiterverarbeitet werden und anschließend mit dem Matrix Metall oder der Matrix Legierung infiltriert werden. Der auf Kohlenstoff basierende Füllstoff liegt wenigstens teilweise im Matrix Metall beziehungsweise in der Matrix Legierung als netzwerkartige Struktur vor, vorteilhaft mit einem Anteil von 10 bis 80 Volumenprozent, wobei davon zwischen 0 bis 5 Volumenprozent in nicht faserartiger Struktur vorliegen können (zum Beispiel als amorpher Kohlenstoff). Der Rest ist dann das Matrix Metall beziehungsweise die Matrix Legierung, sowie gegebenenfalls etwaige Reaktionsprodukte zwischen Matrix Metall/Legierung und dem Kohlenstoff basierenden Füllstoff. Die Reaktionsprodukte mit dem Füllstoff

liegen dabei maximal mit einem Anteil von 10 Volumenprozent vor, Reaktionsprodukte mit der Atmosphäre (z.B. Oxide) liegen mit maximal 10 vol% vor. Die CNT beziehungsweise CNF können in verschiedenen Strukturen Y vorliegen. Die CNX können mit Oberflächenmodifikationen A und/oder Beschichtungen B versehen  
5 sein. Als Matrix Metall kann Cu, Ni, Ag, Au, Mg, Co und Al verwendet werden, und bei Anwendung von Legierungen dieser Metalle können diese zumindest aus 80 Gewichtsprozent des Metalls zusammengesetzt sein. Als Legierungselemente kommen vorteilhaft Legierungselemente zur Anwendung, die entweder den Schmelzpunkt des Metalls erniedrigen und/oder benetzungsfördernd mit dem auf  
10 Kohlenstoff basierenden Füllstoff agieren (in dem sie beispielsweise ein Karbid mit der Oberfläche des CNX-Y/CNX-Y-AB bilden).

Gemäß einem dritten Aspekt der Erfindung wird ein Verbundwerkstoffkörper bereitgestellt, der auf unterschiedliche Weise ausgebildet sein kann.

15

Gemäß einer vorteilhaften Ausführungsform kann vorgesehen sein, dass der Verbundwerkstoff in einer einzigen Schicht zwischen zwei metallhaltigen Matrixwerkstoff enthaltenden Restschichten vorliegt. Bei den Restschichten handelt es sich insbesondere um Restschichten von einer Ursprungsschicht Matrixmetall,  
20 von welcher der überwiegende Teil in den kohlenstoffhaltigen Zwischenstoff diffundiert ist.

Gemäß der vorliegenden Erfindung soll bevorzugt ein Werkstoff mit annähernd isotroper Wärmeleitfähigkeit bereitgestellt werden.

25

Gemäß einer anderen bevorzugten Ausführungsform kann vorgesehen sein, dass der Verbundwerkstoff in zwei Schichten vorliegt, zwischen denen eine metallhaltigen Matrixwerkstoff enthaltende Restschicht angeordnet ist.

30 Bezüglich der Ausgestaltung, Zusammensetzung und Funktionsweise des Verbundwerkstoffkörpers wird zunächst auf die vorstehenden Ausführungen zum

erfindungsgemäßen Verfahren und zum erfindungsgemäßen Verbundwerkstoff vollinhaltlich Bezug genommen und verwiesen.

5 Gemäß einem vierten Aspekt der Erfindung wird ein Verbundkörper bereitgestellt, enthaltend einen wie vorstehend beschriebenen erfindungsgemäßen Verbundwerkstoff, wobei der Verbundwerkstoff in drei oder mehr übereinander gestapelten Schichten vorliegt. Bezüglich der Ausgestaltung, Zusammensetzung und Funktionsweise des Verbundkörpers wird zunächst auf die vorstehenden Ausführungen zum erfindungsgemäßen Verfahren und zum erfindungsgemäßen  
10 Verbundwerkstoff vollinhaltlich Bezug genommen und verwiesen.

Vorteilhaft ist vorgesehen, dass der Verbundkörper in der alternierenden Folge von zwei Metallfolienschichten abgeschlossen wird/ist, die aber genau wie die inneren Schichten den prozesswesentlichen Änderungen in Struktur und Dicke unterliegen  
15 und nur noch als Restschichten vorliegen.

Vorteilhaft können die Schichten Verbundwerkstoff, wie weiter oben schon erläutert wurde, jeweils voneinander durch eine dünne Restschicht (nicht infiltrierten) metallhaltigen Matrixwerkstoffs beabstandet sein.  
20

Die erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffkörper eignen sich insbesondere für die Montage, zur elektrischen Kontaktierung und Wärmeableitung von Halbleiterbauelementen, zu denen Hochleistungstransistoren, beispielsweise MOSFETs (Metal Oxide Semiconductor Field Effect Transistor) und IGBTs (Insulated  
25 Gate Bipolar Transistor), Hochleistungsthyristoren, beispielsweise SCRs (Silicon-Controlled Rectifier), GTOs (Gate Turn-Off thyristor) und IGCTs (Integrated Gate-Commutated Thyristor), sowie Halbleiterlaser zählen.

Nachfolgend wird die Erfindung anhand von Ausführungsbeispielen näher erläutert.  
30 Dazu veranschaulichen anhand von Querschnittsdarstellungen

- Fig. 1a, 1b die Herstellung eines Verbundwerkstoffkörpers nach dem Stand der Technik;
- Fig. 2a bis 2c eine erste Variante eines ersten Ausführungsbeispielen für ein erfindungsgemäßes Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffs;
- 5 Fig. 3a, 3b eine zweite Variante des ersten Ausführungsbeispielen für ein erfindungsgemäßes Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffs;
- Fig. 3c eine erste bevorzugte Weiterbildung der zweiten Variante des ersten Ausführungsbeispielen für ein erfindungsgemäßes Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffs;
- 10 Fig. 3d eine zweite bevorzugte Weiterbildung der zweiten Variante des ersten Ausführungsbeispielen für ein erfindungsgemäßes Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffs;
- 15 Fig. 4a bis 4d eine erste Variante eines zweiten Ausführungsbeispielen für ein erfindungsgemäßes Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffs;
- 20 Fig. 5a, 5b eine zweite Variante eines zweiten Ausführungsbeispielen für ein erfindungsgemäßes Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffs;
- Fig. 6a bis 6c eine erste Variante eines dritten Ausführungsbeispielen für ein erfindungsgemäßes Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffs; und
- 25 Fig. 7a, 7b eine zweite Variante eines dritten Ausführungsbeispielen für ein erfindungsgemäßes Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffs.

### Ausführungsbeispiel 1

Zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffes werden in einem ersten Verfahrensschritt ein 100µm dünner, aus Filtration einer Dispersion entstandenen  
5 „papierartiger“ kohlenstoffhaltiger (bevorzugt CNT- / CNF-basierter) Zwischenstoff 10, sowie eine erste 50µm dünne Kupferfolie 21 und eine zweite 50µm dünne Kupferfolie 22 bereitgestellt (Fig. 2a). Der Zwischenstoff 10 kann dabei beispielsweise mittels eines Beschichtungsverfahrens aus der Gasphase (Chemical Vapor Deposition) hergestellt und mit Chrom beschichtet werden. In einem zweiten  
10 Verfahrensschritt wird der Zwischenstoff 10 zwischen die beiden Kupferfolien 21 und 22 gebracht und mit beiden Kupferfolien auf einander gegenüberliegenden Seiten in Kontakt gebracht (Fig. 2b).

Anschließend wird der so gebildete Stapel 50 mit Wärme und Druck beaufschlagt.  
15 Dazu wird der Stapel in eine geeignete Graphitform mit einer Kavität eingelegt, ein Stempel aufgesetzt und der Stapel in einer Heißpresse unter Wasserstoff bei einer Heizrate von 50 K/min bis auf eine Temperatur von 1150°C hoch geheizt. Nach Erreichen dieser Temperatur wird der Stapel mit einem mechanischen Druck von 20 MPa beaufschlagt wobei die Kupferfolien 21 und 22 aufschmelzen und das flüssige  
20 Kupfer von dem Zwischenstoff 10 wenigstens teilweise aufgenommen wird. Bei diesem Infiltrationsprozess werden im wesentlichen alle Freiräume des Zwischenstoffs 10 mit flüssigem Kupfer belegt. Der Stapel wird für 10 Minuten bei der Maximaltemperatur gehalten, ebenso bleibt dabei der mechanische Druck aufrecht. Die Abkühlung erfolgt mit einer Kühlrate von etwa 20 K/Min.

25 Nach dem Abkühlen und Erstarren des flüssigen Kupfers liegt ein Kohlenstoff-Kupfer-Verbundwerkstoff-Schicht 30 von 100µm in einer etwa 120µm dünnen, folienförmigen Verbundwerkstoffkörper 60 vor, der auf einer ersten Seite der Verbundwerkstoff-Schicht 30 eine erste 5 µm dünne Restschicht 40 Kupfer trägt und  
30 auf einer zweiten, der ersten Seite gegenüberliegenden, Seite der Verbundwerkstoff-Schicht 30 eine zweite 5 µm dünne Restschicht Kupfer trägt (Fig. 2c). Die Restschichten resultieren aus der Forderung, den Zwischenstoff 10 vollständig zu

infiltrieren und keine nennenswerte Restporosität im gebildeten Verbundwerkstoff zuzulassen, weshalb mit einem Materialüberschuss an Kupfer gearbeitet wird. Ein geringer Anteil des Kupfers findet sich nach der Infiltration im Spalt zwischen der Graphitform und dem Stempel.

5

In einer zweiten Variante dieses Ausführungsbeispiels werden Zwischenstoff 10 und Kupferfolien 20 alternierend gestapelt (Fig. 3a). Den äußeren Abschluss des Stapels 51 in Stapelrichtung bilden auf einer ersten Seite des Stapels eine Kupferfolie 21 und auf der der ersten Seite gegenüberliegenden zweiten Seite des Stapels eine  
10 Kupferfolie 22. Der Stapel 51 wird der ersten Variante vergleichbaren Bedingungen zur Infiltration des Zwischenstoffs 10 mit dem verflüssigten Kupfer der Kupferfolien 20, 21 und 22 unterworfen, wobei unter Abkühlung ein Verbundkörper 61 mit Verbundwerkstoff-Schichten 30 von 100µm Dicke, zwischen denen 10µm dünne Kupferschichten 40 nicht infiltrierten Kupferfolienmaterials liegen, geschaffen wird  
15 (Fig. 3b). Die beiden äußeren Seiten des Verbundkörpers weisen Kupferschichten 41 und 42 von 50µm Dicke auf, die daraus resultieren, dass die äußeren Kupferfolien 20 nur in eine Richtung den Zwischenstoff 10 infiltrieren können.

In einer ersten bevorzugten Weiterbildung der zweiten Variante des ersten  
20 Ausführungsbeispiels wird nach Abschluss des Infiltrationsprozesses der Druck auf den Stapel – vorzugsweise uniaxial in Stapelrichtung – erhöht, wodurch die nicht infiltrierten flüssigen Restbestandteile der Kupferschichten 20, 21 und 22 seitlich aus dem Stapel austreten. Dieser Materialaustritt 43 füllt den Spalt zwischen Graphit und Stempel und erstarrt bei Abkühlung zusammen mit dem infiltrierten Material (Fig. 3c).  
25 Bei diesem Herstellungsverfahren verschwindet das Matrixmetall weitgehend aus der Schnittstelle zwischen den Verbundwerkstoff-Schichten 30, wobei die Verbundwerkstoff-Schichten 30 allerdings noch einzeln als solche zu erkennen sind.

In einer zweiten bevorzugten Weiterbildung der zweiten Variante des ersten  
30 Ausführungsbeispiels wird nach Abschluss des Infiltrationsprozesses der Druck auf den Stapel vorzugsweise uniaxial in Stapelrichtung über den Druck bei der ersten bevorzugten Weiterbildung erhöht, wodurch nicht nur die nicht infiltrierten flüssigen

Restbestandteile der Kupferschichten 20 aus dem Stapel herausgedrückt werden sondern auch die infiltrierten Zwischenstoffe 10 oberflächlich derart in Kontakt kommen, vorzugsweise sogar ineinander greifen, dass die infiltrierten Zwischenstoffe 10 nach Abkühlung und Verfestigung des infiltrierten Metalls nicht mehr als von  
5 einander getrennte Verbundwerkstoff-Schichten 30 erkennbar sind, sondern – wie in Fig. 3d dargestellt – einen im wesentlichen einheitlichen Verbundwerkstoffbereich 35 bilden.

### Ausführungsbeispiel 2

10

Ein 150µm dünnes Papier 10 (Fig. 4a), bestehend aus Kohlenstoffnanofasern, wird unter Vakuum allseitig durch physikalische oder – weniger bevorzugt – chemische Abscheidung aus der Dampfphase mit einer Aluminium-Silizium Legierung beschichtet, und zwar solange, bis sich auf der jeweiligen Seite sowie auf den  
15 Seitenkanten/ -flächen des Papiers eine geschlossene Aluminiumschicht 23 auf dem Papier ausbildet (Fig. 4b). Verbleibende Hohlräume im Papier bleiben gegenüber natürlichen Umgebungsbedingungen abgeschlossen. Somit kann das Aluminiumbeschichtete Papier 52 in ein flüssiges Medium gebracht werden, ohne dass das flüssige Medium in das Papier beziehungsweise seine Hohlräume  
20 eindringt. In diesem flüssigen Medium wird eine feldinduzierte – vorzugsweise eine elektrolytische oder elektrophoretische – Abscheidung von Aluminium auf dem aluminiumbeschichteten Papier 52 durchgeführt, und zwar solange, bis die feldinduziert abgeschiedene Aluminiumschicht 24 des so geformten Schichtkörpers 53 eine Dicke von 50µm besitzt (Fig. 4c).

25

In einer ersten Variante des zweiten Ausführungsbeispielles wird der Schichtkörper 53 mit Wärme und Druck beaufschlagt. Dazu wird der Schichtkörper in eine mit Bornitrid beschichtete Graphitform gelegt und in einer Heißpresse unter Argon auf eine Temperatur von 720°C mit einer Heizrate von 20 K/min hochgeheizt. Nach  
30 Erreichen der Temperatur wird ein mechanischer Druck von 10 MPa innerhalb von 5 Minuten aufgebracht. Danach wird die Probe mit 10 K/min abgekühlt. Durch diesen Prozess wird das Papier infiltriert, wobei das Aluminium der Metallisierungen 23 und

24 zusammen mit den benetzungsförderlichen Metallen von dem Papier 10 wenigstens teilweise aufgenommen wird. Bei diesem Infiltrationsprozess werden im wesentlichen alle Freiräume des Papiers 10 mit flüssigem Aluminium belegt.

5 Nach dem Abkühlen und Erstarren des flüssigen Aluminiums liegt ein Kohlenstoff-Aluminium-Verbundwerkstoff-Schicht 30 von 150µm Dicke in einer etwa 170µm dünnen, folienförmigen Verbundwerkstoffkörper 64 vor, in dem die Verbundwerkstoff-Schicht 30 allseitig von einer Hülle 44 nicht infiltrierten Aluminiums umschlossen ist (Fig. 4d).

10 In einer zweiten Variante des zweiten Ausführungsbeispiels werden mehrere Schichtkörper 53 übereinander unter Ausbildung eines Stapels 54 (Fig. 5a) gestapelt und anschließend mit Wärme und Druck beaufschlagt wie in der ersten Variante ausgeführt. Unter diesen Bedingungen wird das Papier infiltriert, wobei das Aluminium der Metallisierungen 23 und 24 zusammen mit den  
15 benetzungsförderlichen Metallen von den Papieren 10 wenigstens teilweise aufgenommen wird. Bei diesem Infiltrationsprozess werden im wesentlichen alle Freiräume der Papiere 10 mit flüssigem Aluminium belegt.

Nach dem Abkühlen und Erstarren des flüssigen Aluminiums liegen mehrere  
20 Kohlenstoff-Aluminium-Verbundwerkstoff-Schichten 30 von 150µm Dicke in einem Verbundkörper 65 vor, die voneinander durch Restschichten nicht infiltrierten Aluminiums beabstandet und allseitig von einer Hülle 44 nicht infiltrierten Aluminiums umschlossen sind (Fig. 5b).

25 Analog der bevorzugten Weiterbildungen der zweiten Variante des vorangegangenen ersten Ausführungsbeispiels kann auch in bevorzugten Weiterbildungen der zweiten Variante des vorliegenden zweiten Ausführungsbeispiels der Druck bei Ende der vollständigen Infiltration der Papiere 10 so erhöht werden, dass im wesentlichen keine Restbestandteile nicht infiltrierten Aluminiums mehr zwischen den infiltrierten  
30 Aluminiumschichten vorliegen, sondern diese aus dem Stapel der Verbundwerkstoffschichten 30 heraus in die den Verbundwerkstoffschichtenstapel beziehungsweise in den Spalt zwischen Graphitform und Stempel gedrückt werden.

### Ausführungsbeispiel 3

Eine 50 µm dünne Silberfolie 20 (Fig. 6a) wird in einem Bad elektrophoretisch an  
5 zwei einander gegenüberliegenden Seiten mit Kohlenstoffnanoröhrchen beschichtet,  
die nach Beendigung des Beschichtungsprozesses als zwei Schichten 11 und 12 von  
25 µm Dicke eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffes beiderseits an der Silberfolie  
haften und mit dieser einen Schichtkörper 55 bilden (Fig. 6b).

10 In einer ersten Variante des dritten Ausführungsbeispielles wird der Schichtkörper 55  
mit Wärme und Druck beaufschlagt. Dazu wird der Schichtkörper in eine Graphitform  
eingelegt, ein Stempel aus Graphit aufgesetzt und in einer Heißpresse bei 50 K/min  
Heizrate auf 1030°C hochgeheizt. Nach Erreichen der Temperatur wird ein  
15 mechanischer Druck von 5 MPa innerhalb von 10 Minuten aufgebracht. Nach  
Erreichen der Maximaltemperatur erfolgt die Abkühlung des Schichtkörpers bei einer  
Kühlrate von 10 K/min. Durch diesen Prozess wird der Schichtkörper infiltriert, wobei  
das flüssige Silber der Silberfolie 20 zumindest teilweise von den  
Kohlenstoffnanoröhrchenschichten 11 und 12 aufgesogen wird. Bei diesem  
Infiltrationsprozess werden im wesentlichen alle Freiräume der Schichten 11 und 12  
20 mit flüssigem Silber belegt.

Nach dem Abkühlen und Erstarren des flüssigen Silbers liegen zwei voneinander  
durch eine etwa 5 µm dünne Restschicht 40 nicht infiltrierten Silbers beabstandete  
Kohlenstoff-Silber-Verbundwerkstoff-Schichten 31 und 32 von etwa 25µm Dicke in  
25 einem etwa 55 µm dünnen, folienförmigen Verbundwerkstoffkörper 66 vor (Fig. 6c).

In einer zweiten Variante des dritten Ausführungsbeispielles werden mehrere  
Schichtkörper 55 übereinander unter Ausbildung eines Stapels 56 (Fig. 5a) gestapelt,  
wobei Schichten 11 und 12 zweier benachbarter Schichtkörper 55 teilweise  
30 ineinander greifen (Fig. 7a). Anschließend wird der Stapel 56 mit Wärme und Druck  
beaufschlagt. In dieser Variante wird ein mechanischer Druck von 20 MPa  
angewendet, wodurch das flüssige Silber der Silberfolien 20 zumindest teilweise von

den Kohlenstoffnanoröhrchenschichten 11 und 12 aufgesogen wird. Bei diesem Infiltrationsprozess werden im wesentlichen alle Freiräume der Schichten 11 und 12 mit flüssigem Silber belegt.

- 5 Nach dem Abkühlen und Erstarren des flüssigen Silbers liegen voneinander durch etwa 5  $\mu\text{m}$  dünne Restschichten 40 nicht infiltrierten Silbers beabstandete innere Kohlenstoff-Silber-Verbundwerkstoff-Schichten 30 von etwa 40  $\mu\text{m}$  Dicke zwischen zwei äußeren Kohlenstoff-Silber-Verbundwerkstoff-Schichten 31 und 32 von etwa 25  $\mu\text{m}$  Dicke in einem Verbundkörper 67 vor.

10

Auch in dieser Variante des dritten Ausführungsbeispiels können in bevorzugten Weiterbildungen die Restschichten Silber im flüssigen Zustand aus dem Stapel von Verbundwerkstoffschichten 30, 31 und 32 herausgepresst, werden, was die Bildung eines einheitlichen Verbundwerkstoffbereiches im Verbundkörper begünstigt.

15

**Bezugszeichenliste**

- 10 Schicht mit kohlenstoffhaltigem Zwischenstoff, vorgesehen die Positionierung  
5 zwischen zwei Schichten 20
- 11 erste äußere Schicht mit kohlenstoffhaltigem Zwischenstoff in einseitiger  
Nachbarschaft einer Schicht 20
- 12 zweite äußere Schicht mit kohlenstoffhaltigem Zwischenstoff in einseitiger  
Nachbarschaft einer Schicht 20
- 10 15 gesinterte kohlenstoffhaltige Schicht
- 20 metallhaltige Matrixschicht, angeordnet zwischen zwei Schichten 10
- 21 erste äußere metallhaltige Matrixschicht in einseitiger Nachbarschaft einer  
Schicht 10
- 22 zweite äußere metallhaltige Matrixschicht in einseitiger Nachbarschaft einer  
15 Schicht 10
- 23 aus der Dampfphase abgeschiedene Metallisierung
- 24 feldinduziert in flüssigem Medium abgeschiedene Metallisierung
- 30 Verbundwerkstoffschicht, hervorgegangen aus einer mit Matrixmaterial  
beidseitig infiltrierten Schicht 10
- 20 31 erste Randverbundwerkstoffschicht, hervorgegangen aus einer mit  
Matrixmaterial einseitig infiltrierten Schicht 10
- 32 zweite Randverbundwerkstoffschicht, hervorgegangen aus einer mit  
Matrixmaterial einseitig infiltrierten Schicht 10
- 35 Verbundwerkstoffbereich, hervorgegangen aus mehreren, einander  
25 benachbarten, mit Matrixmaterial infiltrierten Schichten 10
- 40 Restschicht nicht infiltrierten Matrixschichtmaterials, angeordnet zwischen  
zwei Verbundwerkstoffschichten 30
- 41 erste äußere Restschicht nicht infiltrierten Matrixschichtmaterials in einseitiger  
Nachbarschaft einer Verbundwerkstoffschicht 30 oder eines  
30 Verbundwerkstoffbereiches 35

- 42 zweite äußere Restschicht nicht infiltrierten Matrixschichtmaterials in einseitiger Nachbarschaft einer Verbundwerkstoffschicht 30 oder eines Verbundwerkstoffbereiches 35
- 43 Materialaustritt, entstanden durch das Herausdrücken nicht infiltrierten Matrixschichtmaterials aus dem Bereich zwischen zwei infiltrierten Schichten 10
- 44 Hülle nicht infiltrierten Matrixschichtmaterials, die Verbundwerkstoffschicht/ Verbundwerkstoffschichten 30 oder Verbundwerkstoffbereich 35 allseitig umschließend
- 50 Stapel aus Schicht 10 zwischen zwei Schichten 21 und 22
- 51 Stapel aus mehreren abwechselnd angeordneten Schichten 10 und 20 beziehungsweise 21 und 22
- 52 Schichtkörper aus Schicht 10 und auf dieser aufgedampften Metallisierung 23
- 53 Schichtkörper aus Verbundwerkstoffkörper 52 und feldinduziert in flüssigem Medium auf diesem abgeschiedenem Metallisierung 24
- 54 Stapel aus mehreren Schichtkörpern 53
- 55 Schichtkörper aus Schicht 20 und auf dieser abgeschiedenen kohlenstoffhaltigen Schichten 11 und 12
- 56 Stapel aus mehreren Schichtkörpern 55
- 59 Sinterkörper, bestehend aus Schichten 15 und 20
- 60 Verbundwerkstoffkörper, hergestellt aus Stapel 50
- 61 Verbundkörper, hergestellt aus Stapel 51
- 62 Verbundkörper, hergestellt aus Stapel 51
- 63 Verbundkörper, hergestellt aus Stapel 51
- 64 Verbundwerkstoffkörper, hergestellt aus Schichtkörper 53
- 65 Verbundkörper, hergestellt aus Stapel 54
- 66 Verbundwerkstoffkörper, hergestellt aus Schichtkörper 55
- 67 Verbundkörper, hergestellt aus Stapel 56

## Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffs oder  
5 Verbundwerkstoffkörpers oder Verbundkörpers, bestehend aus einem kohlenstoffhaltigen Material, insbesondere einem Kohlenstoffnanomaterial, und einem metallischen Material, **gekennzeichnet durch** folgende Schritte:
  - a) Herstellen eines Schichtstapels aus zwei oder mehr Schichten, wobei  
10 wenigstens eine der Schichten in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs ausgebildet ist und wobei wenigstens eine Schicht in Form einer metallhaltigen Matrixschicht ausgebildet ist;
  - b) Aufheizen des Schichtstapels auf eine bestimmte Prozesstemperatur, bei der die Matrixschicht aufgeschmolzen wird;
  - c) Vollständiges Infiltrieren des Zwischenstoffs mit aufgeschmolzenem  
15 Matrixmaterial; und
  - d) Abkühlen des entstandenen Verbundwerkstoffs oder Verbundwerkstoffkörpers oder Verbundkörpers.
  
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Schichtstapel aus  
20 mehr als zwei Schichten hergestellt wird, wobei die Schichten in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs und in Form einer metallhaltigen Matrix alternierend gestapelt werden.
  
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die  
25 Schicht(en) in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs aus wenigstens einem kohlenstoffhaltigen Ausgangsstoff, insbesondere aus wenigstens einem aus einem Kohlenstoffnanomaterial bestehenden Ausgangsstoff, hergestellt wird/werden.
  
- 30 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Schicht(en) in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs als zusammenhängende Netzwerkstruktur ausgebildet ist/sind.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die wenigstens eine Schicht in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs und/oder die wenigstens eine Schicht in Form einer metallhaltigen Matrix und/oder der kohlenstoffhaltige Ausgangsstoff bei ihrer Herstellung und/oder bei der Herstellung des Schichtstapels und/oder vor dem Aufheizen des Schichtstapels auf die Prozesstemperatur mit einem benetzungsfördernden Material versehen werden.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass die wenigstens eine Schicht in Form eines kohlenstoffhaltigen Zwischenstoffs und/oder die wenigstens eine Schicht in Form einer metallhaltigen Matrix eine Schichtdicke im Bereich von 10µm bis 500µm, bevorzugt 25µm bis 250µm, besonders bevorzugt 50µm bis 150µm aufweist/aufweisen.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Schichtstruktur der Schichten des Schichtenstapels für einen definierten Zeitraum vollständigen Aufschmelzens erhalten bleibt.
8. Verbundwerkstoff, aufweisend einen kohlenstoffhaltigen Füllstoff, der insbesondere aus einem Kohlenstoffnanomaterial gebildet ist, wobei der Verbundwerkstoff von dem kohlenstoffhaltigen Füllstoff durchsetzt ist, und weiterhin aufweisend einen metallhaltigen Matrixwerkstoff, der aus wenigstens einem reinen Metall oder wenigstens einer Metalllegierung gebildet ist, wobei der metallhaltige Matrixwerkstoff vollständig im Füllstoff infiltrierte ist.
9. Verbundwerkstoff nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass der kohlenstoffhaltige Füllstoff und/oder der metallhaltige Matrixwerkstoff ein benetzungsförderndes Material aufweist/aufweisen.

10. Verbundwerkstoff nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass das benetzungsfördernde Material derart ausgebildet ist, dass es mit dem Kohlenstoff reagiert oder reagieren kann und dass die Reaktionsprodukte mit bis zu 10 Volumenprozent im Verbundwerkstoff vorliegen.
- 5
11. Verbundwerkstoff nach Anspruch 9 oder 10, dadurch gekennzeichnet, dass das benetzungsfördernde Material ein Refraktärmetall, Silizium und/ oder Bor aufweist.
- 10
12. Verbundwerkstoff nach einem der Ansprüche 8 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass dieser in zumindest einer Raumrichtung einen thermischen Ausdehnungskoeffizienten kleiner/gleich 12 ppm/K, vorzugsweise im Bereich von 6 bis 8 ppm/K aufweist.
- 15
13. Verbundwerkstoff nach einem der Ansprüche 8 bis 12, dadurch gekennzeichnet, dass dieser in zumindest einer Raumrichtung eine thermische Leitfähigkeit von größer/gleich 300 W/mK, bevorzugt von größer/gleich 400 W/mK, besonders bevorzugt von größer/gleich 500 W/mK aufweist.
- 20
14. Verbundwerkstoff nach einem der Ansprüche 8 bis 13, dadurch gekennzeichnet, dass der Verbundwerkstoff eine Dichte von größer 80%, bevorzugt von größer 90%, besonders bevorzugt von größer als 95% aufweist.
- 25
15. Verbundwerkstoffkörper, enthaltend einen Verbundwerkstoff nach einem der Ansprüche 8 bis 14, wobei der Verbundwerkstoff in einer einzigen Schicht zwischen zwei metallhaltigen Matrixwerkstoff enthaltenden Restschichten vorliegt, oder wobei der Verbundwerkstoff in zwei Schichten vorliegt zwischen denen eine metallhaltigen Matrixwerkstoff enthaltende Restschicht angeordnet ist.
- 30
16. Verbundkörper, enthaltend einen Verbundwerkstoff nach einem der Ansprüche 8 bis 14, wobei der Verbundwerkstoff in drei oder mehr übereinander gestapelten Schichten vorliegt.

17. Verbundkörper, nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, dass die Schichten Verbundwerkstoff jeweils voneinander durch eine metallhaltigen Matrixwerkstoff enthaltende dünne Restschicht beabstandet sind.

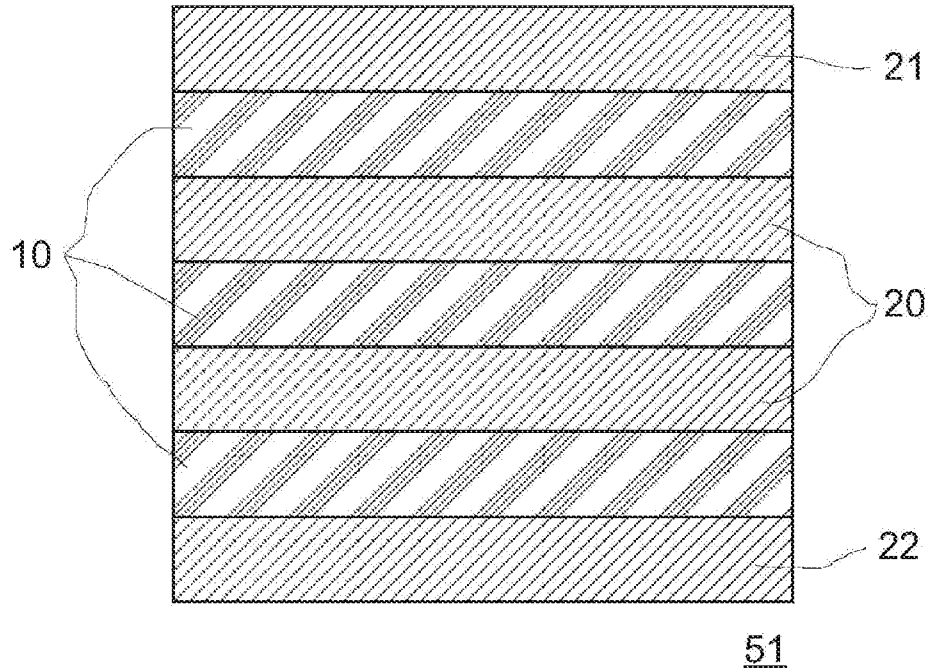


Fig. 1a (Stand der Technik)

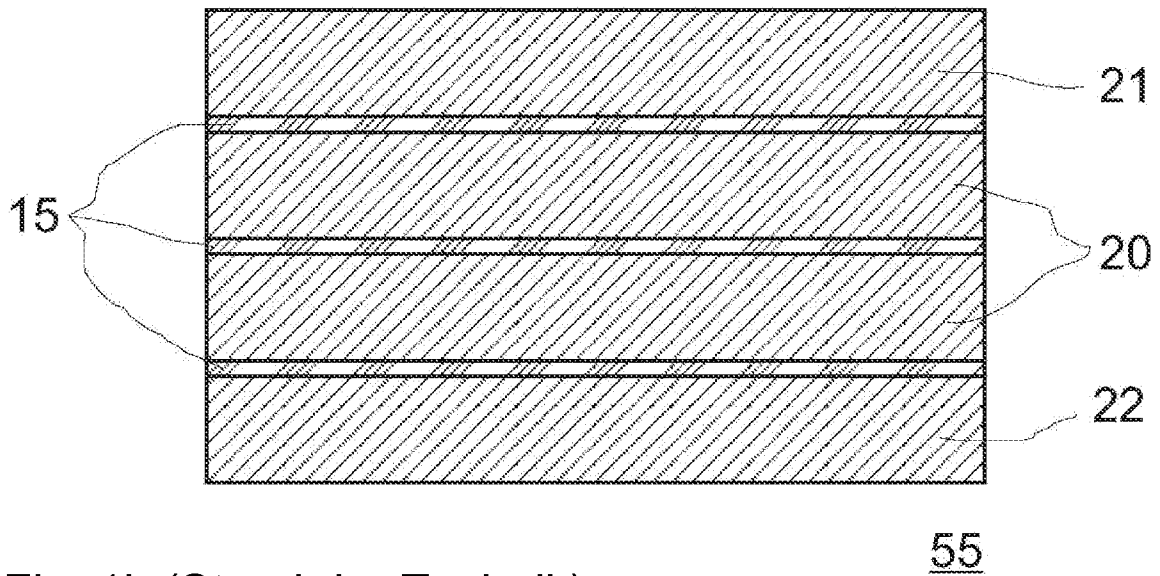


Fig. 1b (Stand der Technik)

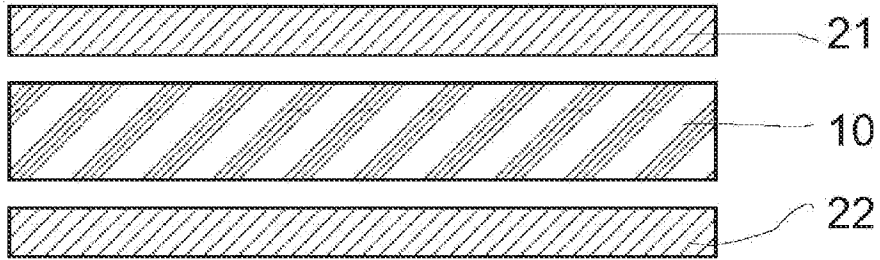


Fig. 2a

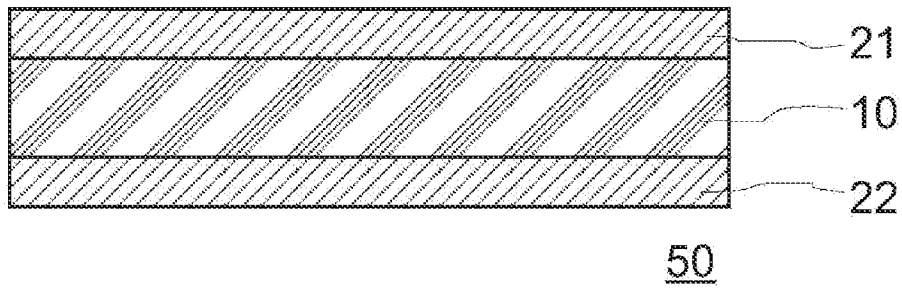


Fig. 2b

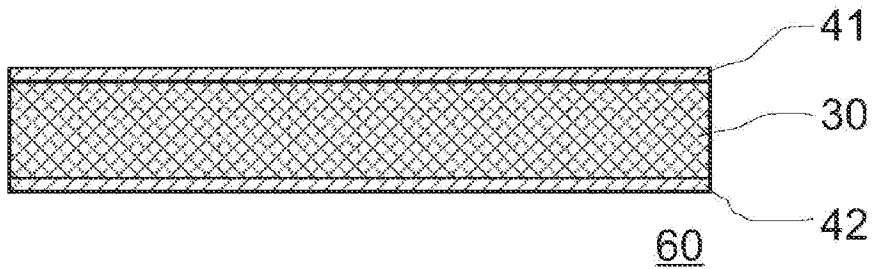


Fig. 2c

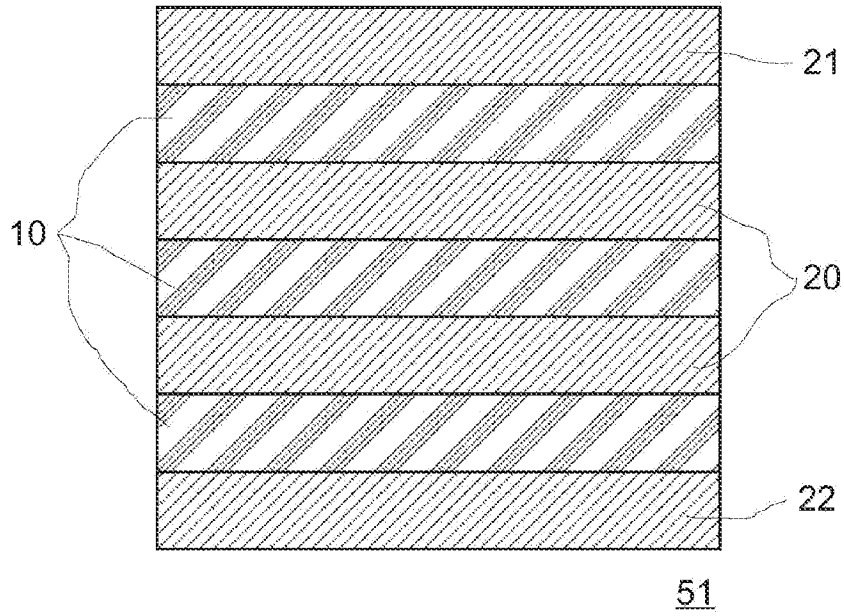


Fig. 3a

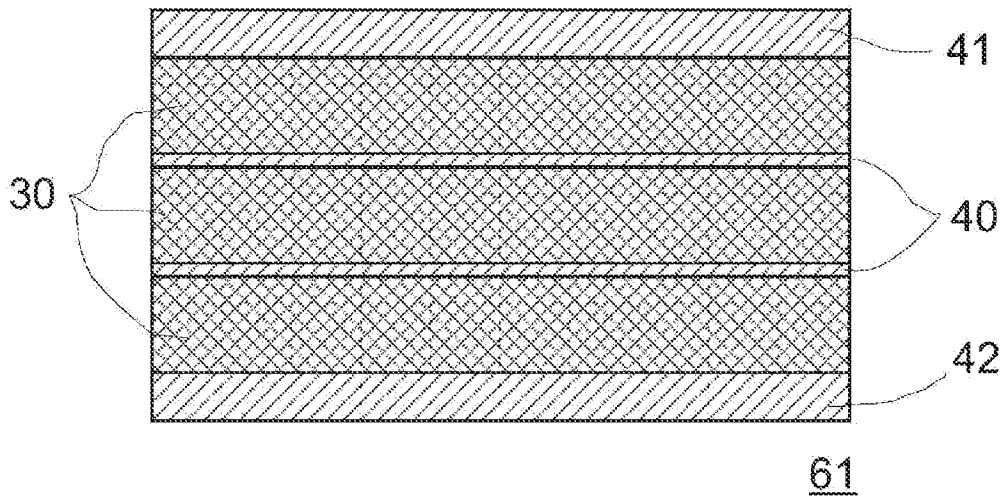


Fig. 3b

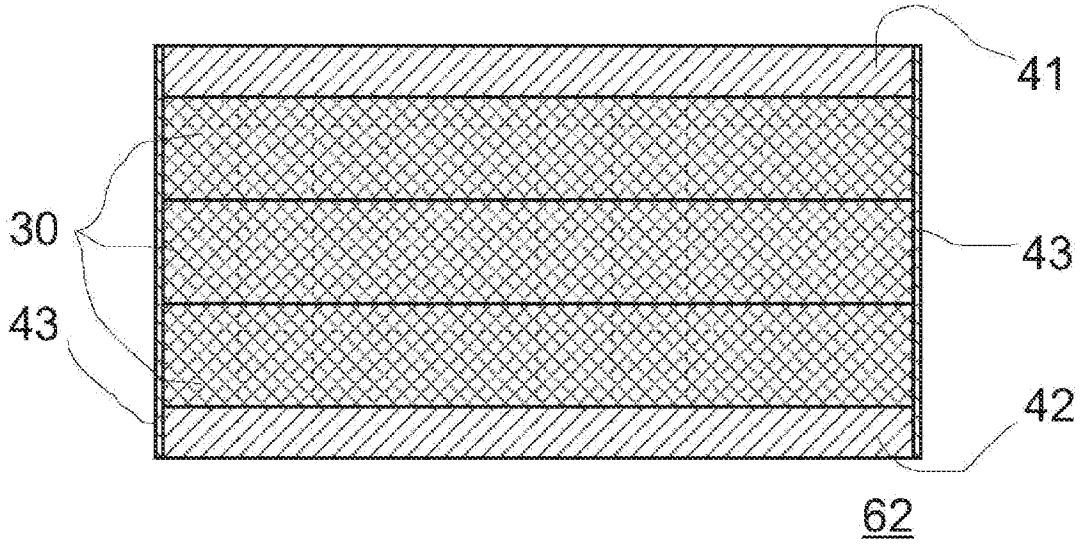


Fig. 3c

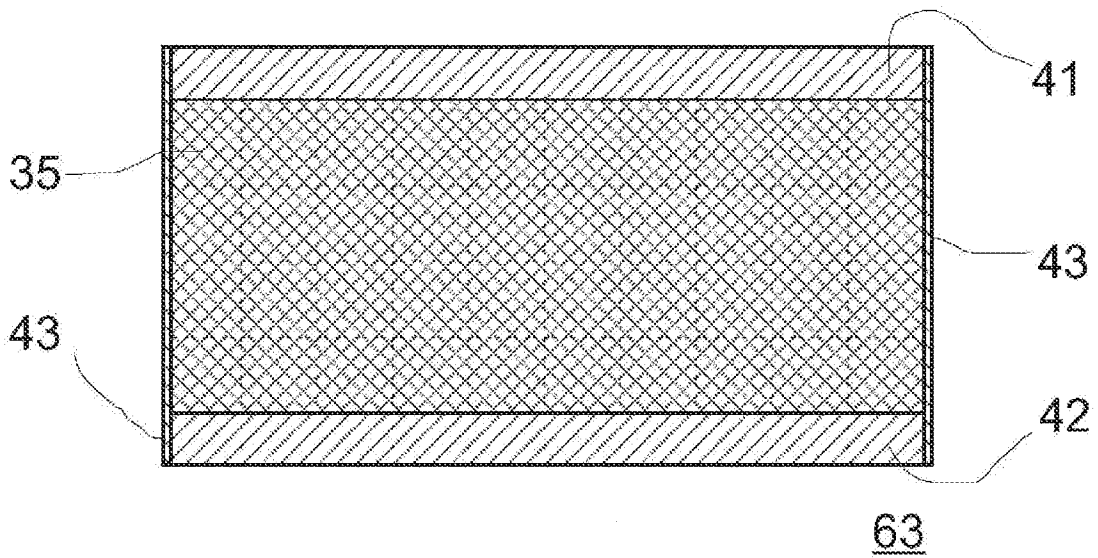


Fig. 3d



Fig. 4a

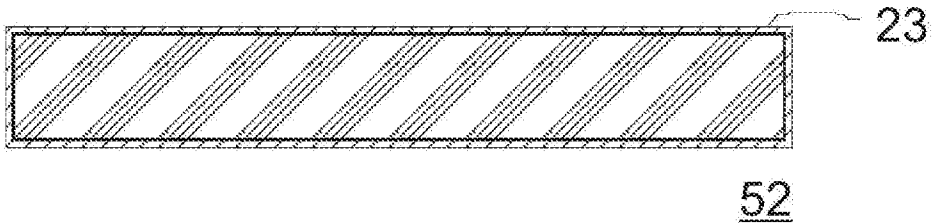


Fig. 4b

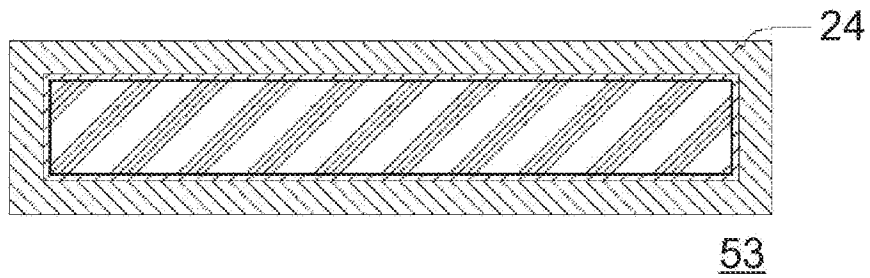


Fig. 4c

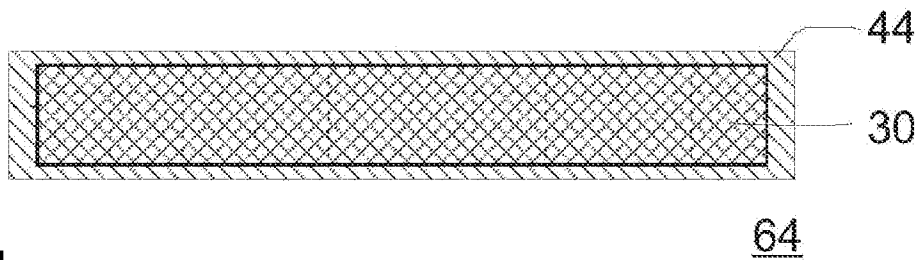


Fig. 4d

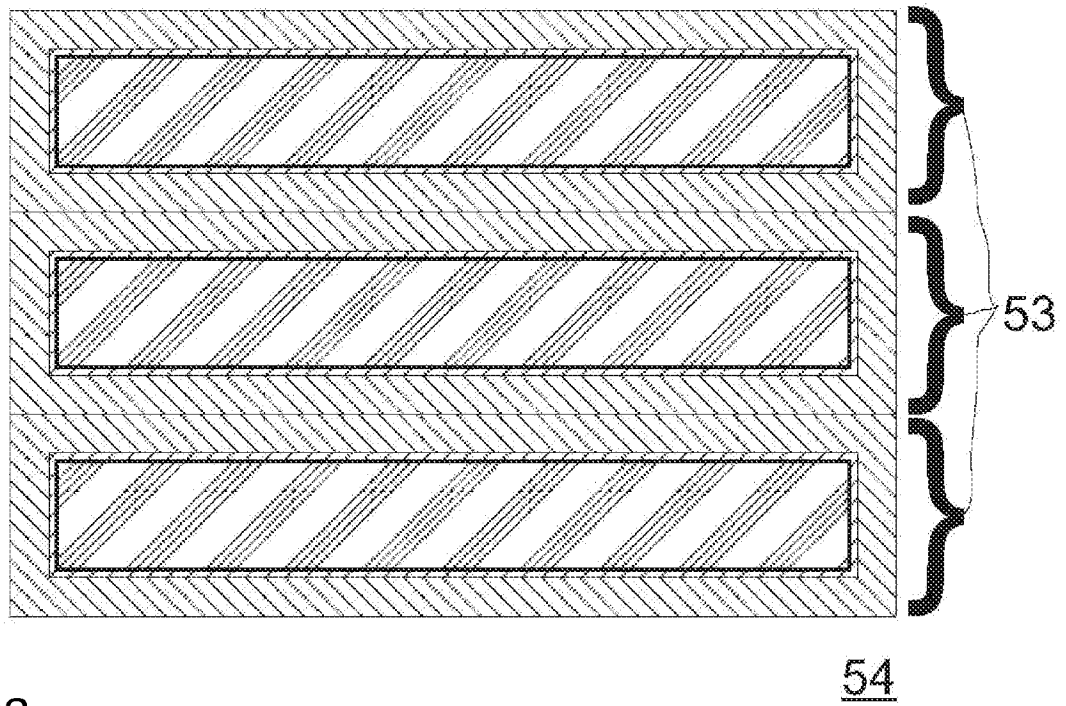


Fig. 5a

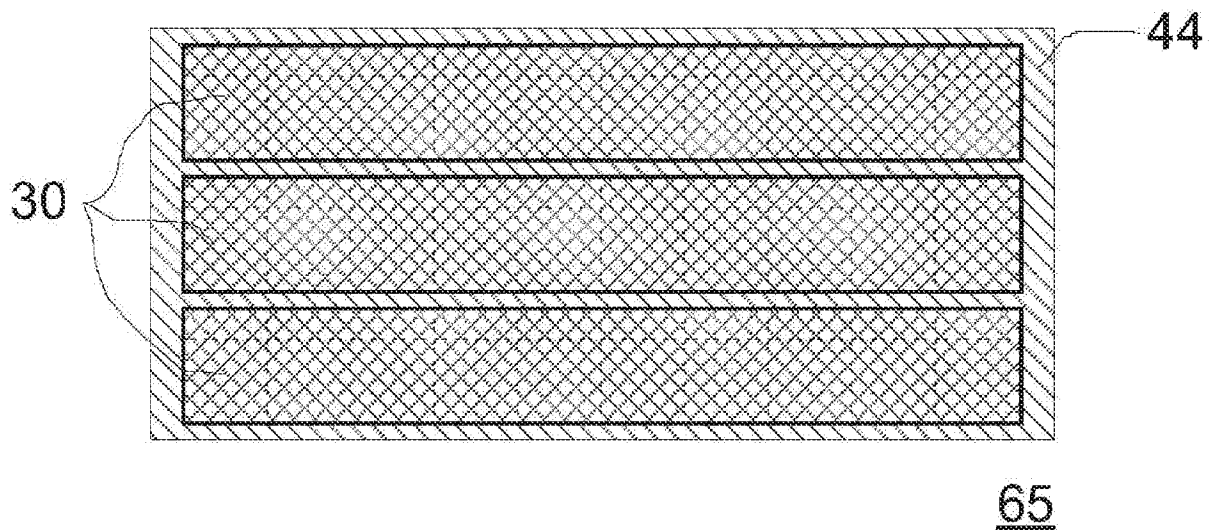


Fig. 5b

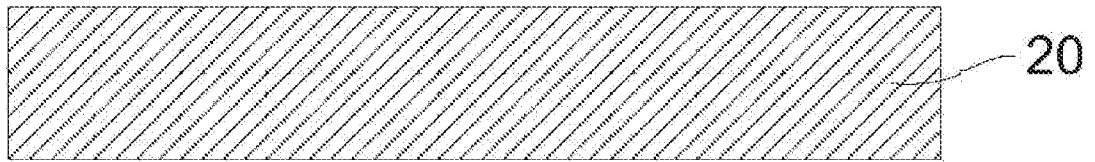


Fig. 6a

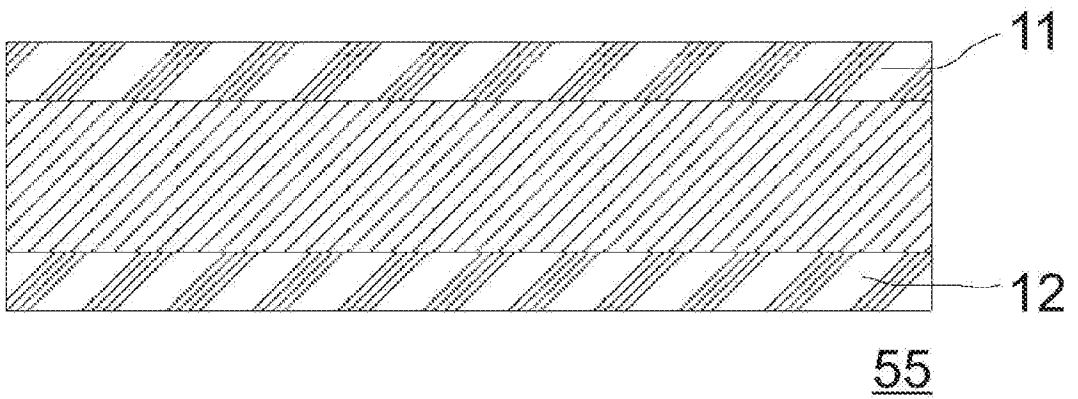


Fig. 6b

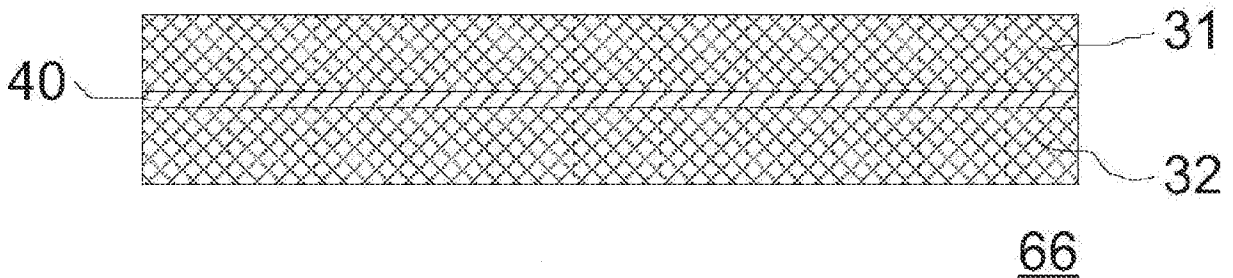


Fig. 6c

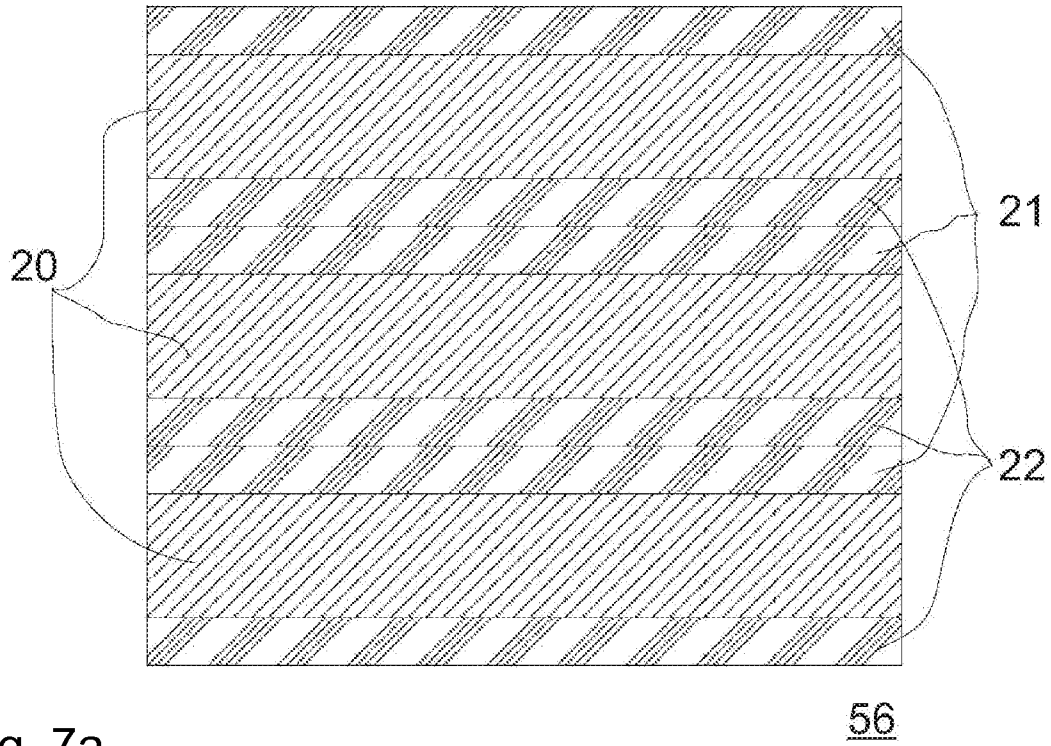


Fig. 7a

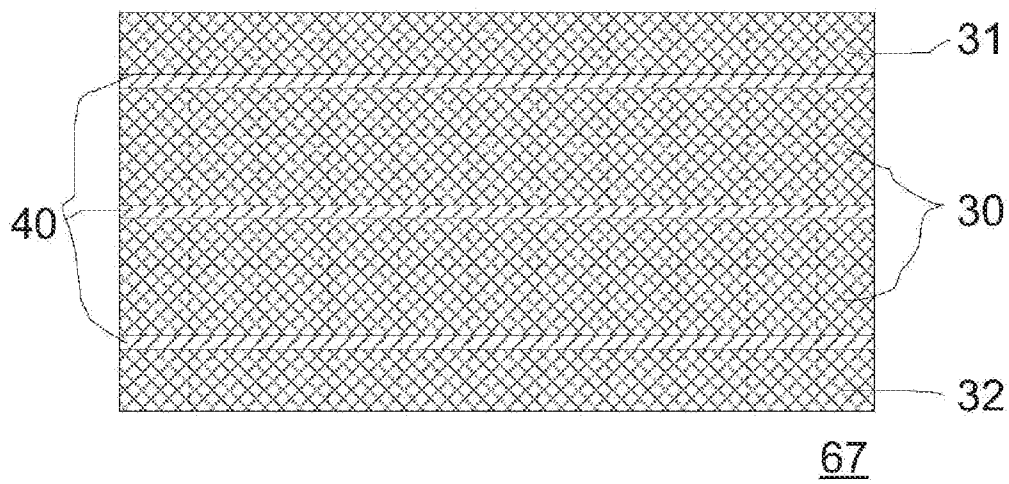


Fig. 7b