

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl⁷

C08K 3/10

[12] 发明专利申请公开说明书

C08K 3/04 C08K 3/22

C08K 3/38 H01B 1/06

[21] 申请号 99815810.0

[43] 公开日 2002 年 1 月 30 日

[11] 公开号 CN 1333801A

[22] 申请日 1999.10.14 [21] 申请号 99815810.0

[30] 优先权

[32] 1999.1.29 [33] US [31] 09/239,913

[86] 国际申请 PCT/US99/23950 1999.10.14

[87] 国际公布 WO00/44823 英 2000.8.3

[85] 进入国家阶段日期 2001.7.23

[71] 申请人 酷选择股份有限公司

地址 美国罗得岛

[72] 发明人 K·A·麦卡洛

[74] 专利代理机构 上海专利商标事务所

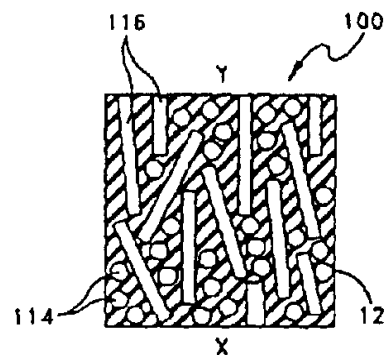
代理人 陈文青

权利要求书 2 页 说明书 7 页 附图页数 3 页

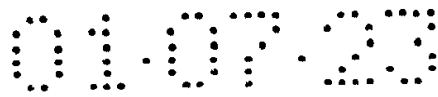
[54] 发明名称 导热复合材料

[57] 摘要

提供一种热导率高于 $22\text{W/m}^\circ\text{K}$ 的导热成型组合物(100)。导热组合物(100) 包含 30 - 60 体积% 的聚合物基体(12)。在该组合物中含有 25 - 60 体积% 的第一种导热填料(116), 该填料具有至少为 10: 1 的较高长宽比。在该组合物混合物(100)中也含有 10 - 25 体积% 的第二种导热填料(114), 该填料具有 5: 1 或更小的较低长宽比。



ISSN 1008-4274



权 利 要 求 书

1. 一种高度导热的成型组合物，它的热导率高于 $22 \text{ W/m}^{\circ}\text{K}$ ，它包含：
30—60 体积%的聚合物基体；
- 5 25—60 体积%的第一种导热填料，所述第一种导热填料的长宽比至少为 10:1；和
10—25 体积%的第二种导热填料，所述第二种导热填料的长宽比小于 5:1。
2. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述聚合物基体是液晶聚合物。
- 10 3. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第一种导热填料的形状是薄片状。
4. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第一种导热填料的形状是稻谷状。
5. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第一种导热填料的形状是
15 股线状。
6. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第一种导热填料的形状是胡须状。
7. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第一种导热填料是选自铝、氧化铝、铜、镁和黄铜的金属材料。
- 20 8. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第一种导热填料是碳材料。
9. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第二种导热填料的形状是球形。
10. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第二种导热填料的形状是颗粒状。
- 25 11. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第二种导热填料是选自铝、氧化铝、铜、镁和黄铜的金属材料。
12. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第二种导热填料是氮化硼。
13. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述第二种导热填料是碳。
- 30 14. 如权利要求 1 所述的成型组合物，其中所述聚合物基体占约 50 体积%；所述第一种导热填料占约 35 体积%；和所述第二种导热填料占约 15 体

积%。

15. 一种导热聚合物组合物，它包含聚合物、第一种导热填料和第二种导热填料的混合物，所述第一种导热填料的长宽比大于 10:1，所述第二种导热填料的长宽比小于 5:1。

5 16. 如权利要求 15 所述的聚合物组合物，其中所述聚合物是液晶聚合物。

17. 如权利要求 15 所述的聚合物组合物，其中所述第一种导热填料是碳薄片。

18. 如权利要求 15 所述的聚合物组合物，其中所述第二种导热填料是氮化硼颗粒。

10 19. 如权利要求 15 所述的聚合物组合物，其中所述组合物的热导率高于 23 W/m²K。

20. 一种导热组合物，它包含：

基体材料；

具有较高长宽比外形的第一种导热填料；和

15 具有较低长宽比外形的第二种导热填料。

21. 如权利要求 20 所述的导热组合物，其中所述基体材料是金属材料。

22. 如权利要求 20 所述的导热组合物，其中所述基体材料是聚合物。

23. 如权利要求 20 所述的导热组合物，其中所述第一种导热填料的长宽比至少为 10:1。

20 24. 如权利要求 20 所述的导热组合物，其中所述第二种导热填料的长宽比为 5:1 或更小。

导热复合材料

5 技术领域

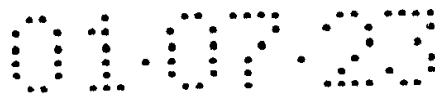
本发明总体上涉及一种改进的复合材料。更具体地说，本发明涉及一种易于成型(moldable)或铸塑(castable)的导热复合材料。

背景技术

10 在散热工业中皆知的是使用金属材料用于导热用途，例如为冷却半导体器件组件所需的热散逸。对于这些用途如散热器，一般从块状金属上将金属材料切削或机械加工成所需的形状。然而，这种金属导热制品通常非常笨重，机械加工成本高并且易于腐蚀。而且，机械加工的金属散热制品的几何形状受到与机械或切削加工过程有关的固有缺点的很大限制。结果，使用机械加工成所需形状的金属材料的要求仅由于其设计上的问题而在散热设计上存在
15 严重的局限性，尤其是当已知其有一定的几何形状时，该要求应能达到较高的效率，但却由于机械加工金属制品的局限性而无法达到。

在已有技术中大家都知道改进散热制品的整个几何形状能显著地提高制品的总性能，即使材料是相同的。因此，改进散热器几何形状的需求要求寻找一种替换方法来机械加工块状金属材料。为了满足这个需求，在已有技术
20 中业已进行了多种尝试，制备包含其中所述的导热填料的成型组合物，以便获得所需的导热性。使导热复合材料成型的能力能设计出几何形状较为复杂的部件，从而改进部件的性能。

在已有技术中进行的尝试包括使用填有粒状材料如氮化硼颗粒的聚合物
25 基体。同样，业已进行了多种尝试，以期获得填有薄片状填料的聚合物基体。这些尝试事实上是可成型为复杂的几何形状，但仍不能达到金属机械加工部件所具有的所需性能的程度。另外，已知的导热塑料材料是不适宜的，因为其制造一般非常昂贵，这是由于它要使用非常昂贵的填料。再者，由于在成型过程中对填料排列的关注，故必须以极高的精密度来使这些导热复合材料
30 成型。即使精密成型和设计，流体湍流、由于产品复杂几何形状而与模具发生碰撞等固有问题也都使其不能很好地让填料定位，这样组合物的性能比期



望的要差得多。

而且，组合物的整个基体都必须令人满意，因为热传导是一种整体性能 (bulk property)，而非诸如电传导那样的直接路径性能。需要直接路径来导电。然而，热是在整体中进行传导的，其中用物体的整个体积来进行传导。

5 因此，即使让高度导热的窄导管穿过导热低得多的物体，其热传导也不如在
整个物体中一定程度上均匀导热的物体那么好。因此，复合材料体整个基体的
导热性的一致性对整体高导热性来说是至关重要的。

鉴于上述状况，目前需要一种高度导热的复合材料。另外，需要一种可
成型或铸塑成复杂产品几何形状的复合材料。也需要这样一种可成型制品，
10 其导热性尽可能与纯金属导热材料的导热性接近，而其制造成本比较低。

发明的概述

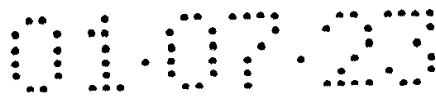
本发明保持了已有技术中导热塑料组合物的优点。另外，它能提供目前
商购组合物所没有的新优点，并克服这种目前商购组合物的许多缺点。

15 本发明总体上涉及新颖和独特的导热塑料复合材料，其有在热量必须从
一个区域转移到另一个区域以免器件损坏的散热用途中的特殊应用。本发明的
复合材料是一种能以较低的成本来制造的高度导热的复合材料。本发明的
导热成型组合物具有高于 $22 \text{ W/m}^{\circ}\text{K}$ 的热导率。导热组合物包含 30—60 体积%
的聚合物基体 (polymer base matrix)。在该组合物中含有 25—60 体积%的
20 第一种导热填料，该填料具有至少为 10:1 的较高长宽比。在该组合物混合物
中也含有 10—25 体积%的第二种导热填料，该填料具有 5:1 或更小的较低长
宽比。

在本发明组合物的成型过程中，将混合物加到模腔内，使其流成各种部
件的几何形状。长宽比高的填料通常随混合物在模具中的流动而排列，但在
25 其中固有地留下小的无规空隙。混合物中长宽比低的填料填充着混合物中长
宽比高的填料之间的空隙。结果，填料组分之间的界面数目和基体厚度都大
大减小，这样就使导热性和性能都优于已有技术导热复合材料的导热性和性
能。

因此，本发明的一个目的是提供一种具有比已有技术复合材料高得多的
30 热导率的导热复合材料。

本发明的一个目的是提供一种可成型的导热复合材料。



本发明的再一个目的是提供一种成本低的导热复合材料。

本发明的另一个目的是提供一种能成型为复杂部件几何形状的导热复合材料。

5 本发明的再一个目的是提供一种重量比金属材料明显更轻的导热复合材料。

本发明的还有一个目的是提供一种热导率接近纯金属材料的热导率的导热复合材料。

附图的简要说明

10 本发明特有的新颖特征将在所附的权利要求书中阐明。然而，本发明的较好实施方案连同进一步的目的和附带的优点将参考与所附附图结合在一起的下述详细描述而得以更好地理解，所述附图是：

图 1 是在基体中使用长宽比低的填料的已有技术导热复合材料的横截面；

15 图 2 是在基体中使用长宽比高的填料的已有技术导热复合材料的横截面，其中图示的填料是理论理想化的排列；

图 3 是在基体中使用长宽比高的填料的已有技术导热复合材料的横截面，其中图示的填料是成型后的实际排列；

图 4 是使用长宽比高的填料和长宽比低的填料的本发明导热复合材料的横截面；

20 图 5A 是具有薄片状外形的长宽比高的填料组分的顶视图；

图 5B 是沿图 5A 中 5B-5B 线的横截面图；

图 6A 是具有稻谷状外形的长宽比高的填料组分的顶视图；

图 6B 是沿图 6A 中 6B-6B 线的横截面图；

图 7A 是具有股线状外形的长宽比高的填料组分的顶视图；

25 图 7B 是沿图 7A 中 7B-7B 线的横截面图；

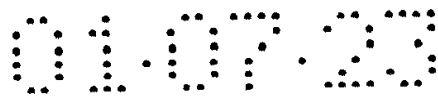
图 8 是具有胡须状外形的长宽比高的填料组分的顶视图；

图 9 是长宽比低的球形填料组分的顶视图；和

图 10 是长宽比低的颗粒填料组分的顶视图。

30 实施本发明的方式

首先参看图 1-3，图示了容易商购的各种已有技术的复合材料 10 和 30。



尤其是，这些已有技术的复合材料 10 和 30 通常显示有如聚合物基体 12 和不同类型的填料 14 和 16。为清楚和便于说明起见，这些组合物的每一种都是以放大比例来图示的。

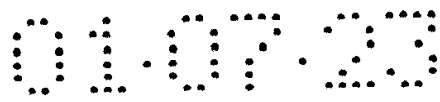
5 如图 1 所示，提供了一种含有聚合物基体 12 和球形填料 14 的已有技术复合材料 10 的横截面图。在这个已有技术的例子中，基体 12 填有长宽比低的填料 12，该填料的长度与宽度之比一般小于 5:1。例如，该混合物可以包含 40 体积%的基体和 60 体积%的粒状或球形填料。聚合物基体 12 基本上是不导热的，球形填料 14 是一种金属材料或氮化硼，其独立热导率的数量级约为 400 W/m²K。

10 可以看出导热填料在聚合物基体中的填充将使该材料具有导热性，并使材料可成型。当用作导热体时，材料 10 必须能将热量例如从材料的 X 侧传热到 Y 侧。在此传热过程中，热量必须从导热填料组分传到相邻的导热填料组分，从而通过从 X 到 Y 的路径。由于图 1 选择的填料是长宽比低的粒状或球形组分，故热量必须穿过几个填料组分之间的多个界面以及位于填料组分之间的不导热聚合物。热量必须穿过的界面越多和热量必须通过的聚合物越多，15 则热导率的下降就越大。而且，填料的加入量过多会阻止基体聚合物浸润，从而在最终成型产品中导致不希望有的小气泡。

现在参看图 2，理想化的已有技术组合物 20 在聚合物基体 12 中使用长宽比高的填料 16。图 2 说明了试图解决上述与在热传导的两个点之间太多界面20 和太多聚合物有关的问题。图 2 说明了理想化的组合物 20，其中长宽比高的填料 16 在聚合物基体 12 中完美地排列着。在此理想化的组合物 20 中，长宽比高的填料 16 完美地排列，从而减少了热量必须穿过的界面的数目和热量必须通过的聚合物 12 的体积。在此理想化的组合物中，当从点 X 传到 Y 时仅遇到 2 或 3 个界面，与此相反，在图 1 中的组合物 10 要遇到 7 或 8 个界面。

25 尽管图 2 所示的组合物 20 是理想化和优选的，但实际上在本领域中不可能达到这种状态。这主要是由于成型部件的几何形状。如上所述，使用导热塑料组合物 20 的一个主要原因是它可成型为较复杂的几何形状，从而达到较好的散热效果。因此，当将导热聚合物材料成型时，一般会遇到复杂的部件几何形状。

30 对于这些复杂的几何形状，填有填料的基体的湍流流动是常见的，从而导致填料的碰撞和不均匀的排列。尽管长宽比高的填料的平行排列显然是优

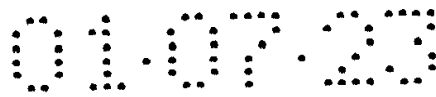


选的，但这不可能达到。而且，湍流流动和与模具边缘的碰撞通常会使得长宽比高的填料断裂，尤其是其长宽比大于 20:1 时。图 3 说明了含有填料 16 的实际组合物 30，所述填料 16 与聚合物 12 中的相邻填料 16 略微有点平行。图 3 是本领域遇到的情况，与图 2 所示的理论理想化的排列相反，这是与含有填料的成型材料有关的固有问题所致。从图 3 可以看出，与图 1 相比，从点 X 传到 Y 过程中的界面数或从一个填料 16 到另一个填料的转变数减少，然而，在传导路径上不导热聚合物材料的体积却增大，这样就大大降低了组合物从 X 到 Y 路径的总热导率。而且，长宽比高的填料 16 的断裂也会使组合物的热导率下降。

10 现在参看图 4，它图示了本发明的组合物 100。组合物 100 包含基体 112，它较好是一种聚合物材料，如液晶聚合物。填入聚合物基体 112 中的是长宽比低的填料 114 和长宽比高的填料 116，两者都是高度导热的材料。本发明在相同的基体 112 中使用长宽比低的填料 114 和长宽比高的填料 116。如图 3 所示，长宽比高的填料 116 的完美平行排列是不可能达到的。结果，在排列差的长宽比高的填料 116 之间会存在太多的空隙。本发明使用长宽比低的填料 114 来填充由于成型过程中湍流和复杂模具几何形状所致的相邻长宽比高的填料之间自然存在的空隙。由于在同一组合物中使用长宽比低的填料和长宽比高的填料，故转变表面的总数目可以大大减少，同时可以用先前填充在图 3 所示不导热聚合物中的长宽比低的填料来替代空隙。

20 图 4 所示的本发明组合物 100 包含基体 112，它较好是由液晶聚合物制成。液晶聚合物由于其高度结晶性和其排列填入其中的填料的自然倾向而优选。各种其它类型的聚合物也可以使用。而且，若需要压铸导热体来使用，则基体可以是金属材料。

如图 5-8 所示，可以使用各种不同类型的长宽比高的填料，它们仍都在本发明的范围内。如图 5A 和 5B 所示，将长宽比高的填料 116 图示成薄片状或片状外形 122，其长度为 L，厚度为 T。图 6A 和 6B 说明了另一种长宽比高的填料 116，将其图示成稻谷状外形 124，其长度为 L，厚度为 T。图 7A 和 7B 图示了股线状外形 126，其长度为 L，厚度为 T。图 8 图示了胡须状外形 128，其长度为 L，厚度为 T。例如，长宽比高的填料较好是 2/1000-4/1000 英寸厚、40/1000 英寸长的碳薄片，从而达到最小长宽比约为 10:1。长宽比较好高达 50:1 或甚至更高。尽管这种尺寸是较好的，但视所需的用途可以采用其



它大小的长宽比高的填料。或者，也可以使用直径为 200 微米的碳纤维。

在图 5-8 所示的这些适用于本发明的每一种外形中，长度 L 与厚度 T 的长宽比至少为 10:1。而且，用作长宽比高的填料 116 的材料可以是铝、氧化铝、铜、镁、黄铜和碳。

5 现在参看图 9 和 10，它们图示了合适的长宽比低的填料外形的两个例子。图 9 图示了基本上球形的填料外形 130，其中该组分的直径为 D。这样，这种填料外形的长宽比约为 1:1。另外，图 10 说明了颗粒状或粒状填料外形 132 用作长宽比低的填料 114。这种粒状外形 132 的形状略微有点不规则，其高度 H 与宽度 W 之比为 2:1 或类似比例。按本发明，长宽比低的填料 114 的长宽比
10 为 5:1 或更小。而且，用作长宽比低的填料 114 的材料可以是铝、氧化铝、铜、镁、黄铜和碳。长宽比低的填料的直径或宽度较好约为 10/1000 英寸，但视所需的用途可为不同的大小。

在本发明的复合材料混合物中，按体积计，较好的是基体 112 占 30-60%；长宽比高的填料 116 占 25-50%；长宽比低的填料 114 占 10-25%。在
15 上述所披露的范围内，可以获得高的体积填充和合适的浸润。

下面是本发明的实施例和较好的实施方案。

实施例

20 提供占组合物混合物 50% (体积) 的液晶聚合物基体。提供占组合物混合物约 35% (体积) 的长宽比约为 50:1、独立热导率约为 800 W/m²K 的长宽比高的碳薄片。最后，提供 15% (体积) 长宽比约为 4:1 并且独立热导率约为 400 W/m²K 的氮化硼颗粒。

下述比较说明了图 1 和 3 所示的已有技术组合物的热导率与图 4 所示的本发明组合物的热导率相比较。

	基体聚合物 (按体积计)	长宽比高的填料 (按体积计)	长宽比低的填料 (按体积计)	热导率 (W/m ² K)
已有技术 (图 1)	40% LCP	N/A	60% 氮化硼颗粒	19
已有技术 (图 3)	50% LCP	50% 碳纤维无规长度的混合物, 长宽比为 50:1	N/A	22
本发明 (图 4)	50% LCP	35% 碳纤维无规长度的混合物, 长宽比为 50:1	15% 氮化硼颗粒	28

基于上述内容, 可以制得优良的可成型、高度导热的复合材料。对已有技术明显改进的本发明的组合物尝试制造这种可成型的导热材料。尤其是, 5 本发明所提供的热导率, 极大地改进了已知的组合物, 从而允许部件的几何形状复杂, 这样就能制得更为有效的散热器件。

本领域的技术熟练者应明白的是在不偏离本发明精神的情况下可以对所列举的实施方案作出各种改变和改进。认为所有这些改进和改变都被所附的权利要求书覆盖。

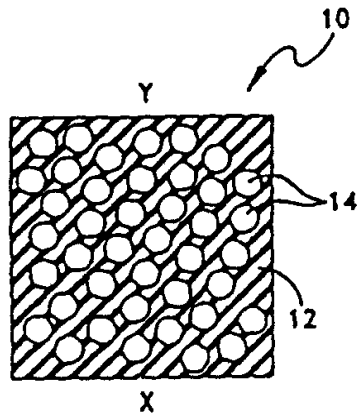


图 1
(已有技术)

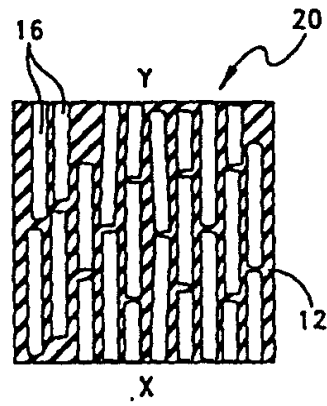


图 2
(已有技术)

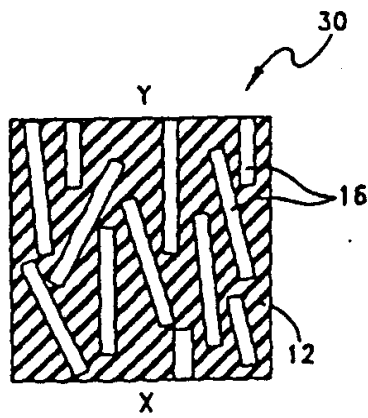


图 3
(已有技术)

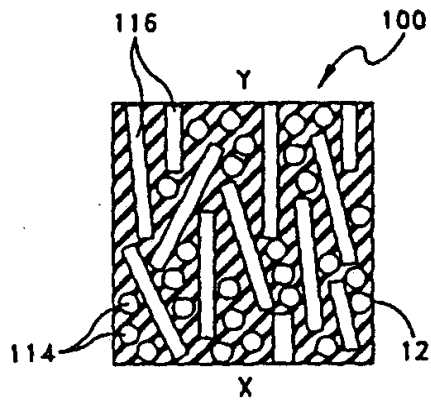


图 4

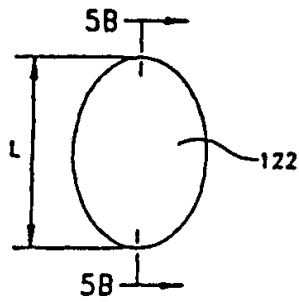


图 5A

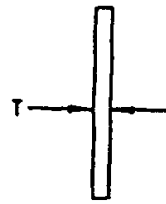


图 5B

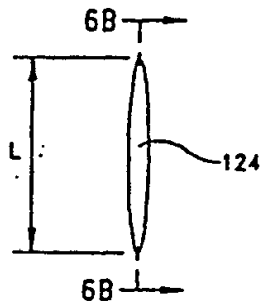


图 6A

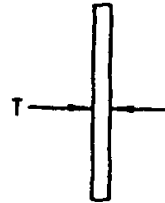


图 6B

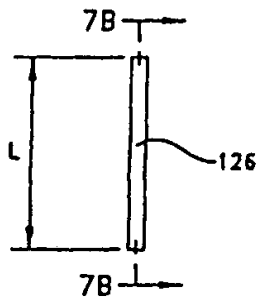


图 7A

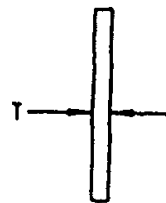


图 7B

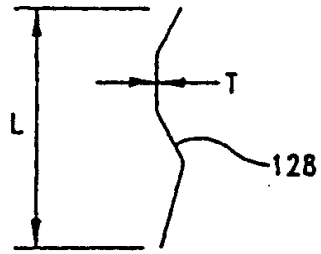


图 8

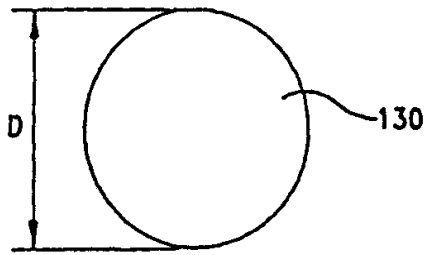


图 9

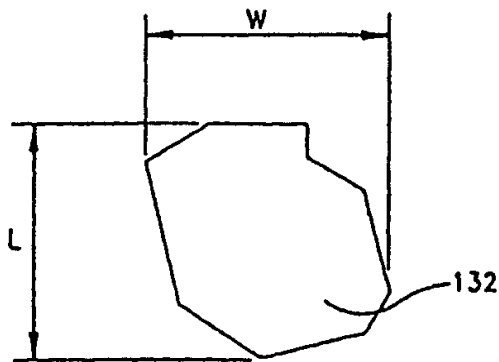


图 10