

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 806 931**

51 Int. Cl.:

C04B 35/645 (2006.01)

C04B 37/02 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **29.03.2010** **PCT/EP2010/054129**

87 Fecha y número de publicación internacional: **07.10.2010** **WO10112468**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **29.03.2010** **E 10712054 (5)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **29.04.2020** **EP 2411349**

54 Título: **Procedimiento para el establecimiento de una conexión de grafito y metal de soporte, así como elemento compuesto**

30 Prioridad:

28.03.2009 DE 102009014407

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
19.02.2021

73 Titular/es:

SGL CARBON SE (100.0%)
Söhnleinstrasse 8
65201 Wiesbaden, DE

72 Inventor/es:

MERTINS, HANS-CHRISTOPH

74 Agente/Representante:

ELZABURU, S.L.P

ES 2 806 931 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Procedimiento para el establecimiento de una conexión de grafito y metal de soporte, así como elemento compuesto

La invención se refiere a un procedimiento para el establecimiento de una conexión entre una capa de metal de soporte y una capa de grafito, así como un elemento compuesto que comprende una capa de grafito y una capa de metal de soporte.

Para muchas aplicaciones, el grafito tiene buenas propiedades mecánicas, térmicas, eléctricas y químicas, es económico y compatible con el medio ambiente. Por ello, p. ej. el grafito se usa para el revestimiento de recipientes en los que se desarrollan procesos a alta temperatura. El grafito tiene la ventaja respecto a los plásticos de que se comporta de forma químicamente estable y neutra respecto a los procesos, en particular también a temperaturas más elevadas. Debido a sus propiedades moldeables, el grafito se utiliza como material de obturación en instalaciones a alta temperatura y a alta presión. Debido a la conductividad eléctrica, el grafito se puede conformar en puntas o usarse como recubrimiento de electrodos de punta para la generación de altos campos eléctricos. Asimismo, se usa grafito como electrodo plano en las baterías.

A continuación, mediante la designación de "grafito" o "capa de grafito" se deben considerar aquellas sustancias o capas a base de grafito, como p. ej. cuerpos moldeados de grafito obtenidos mediante prensado de grafito expandido.

Para mejorar la capacidad de carga de las capas de grafito respecto a fuerzas a flexión y tracción, se conectan hasta ahora en uno o ambos lados con un metal de soporte. Se desea que debido a estas conexiones no se empeoren las propiedades mecánicas, térmicas, eléctricas y químicas de la capa de grafito. En el estado de la técnica, fuera de conexiones en arrastre de forma no se conocen conexiones en las que se puedan conservar estas propiedades del grafito después de la fijación sobre un soporte de metal.

Se conoce el establecimiento de una conexión adhesiva entre una capa de grafito y un soporte de metal mediante una fijación mecánica y mediante un pegado. Una fijación mecánica de la capa de grafito se puede realizar a través de un dentado con un soporte de metal, que se produce por un prensado con una superficie de metal de soporte áspera o en forma de red. En el caso de una conexión adhesiva, la capa de grafito se conecta de forma adherente con el metal de soporte mediante adhesivos orgánicos o inorgánicos.

En el caso de una fijación mecánica de una capa de grafito sobre un soporte de metal, las desventajas consisten en un deterioro de la capa de grafito. Las puntas de metal presentes debido a la rugosidad superficial generan rupturas locales en la capa de grafito, de modo que en estos puntos p. ej. se empeoran las propiedades térmicamente aislantes, o eléctricamente conductoras o también de obturación. Además, en el caso de un prensado del grafito sobre un soporte de metal, el grafito se comprime tan fuertemente que ya no se puede usar, por ejemplo, como material de obturación. En el caso de una fijación mecánica de microelectrodos u otras pequeñas piezas de grafito mediante prensado se modifica su forma al ejercer la fuerza.

Las conexiones adhesivas también poseen desventajas. Aquí, la capa de adhesivo entre el soporte de metal y capa de grafito tiene un grosor típicamente de al menos algunos micrómetros. Esta capa adhesiva adicional con frecuencia no satisface las condiciones químicas, térmicas, eléctricas y mecánicas requeridas para el uso verdadero de la capa de grafito y con ello limita el sector de uso del grafito pegado. El adhesivo puede salir en forma de gas en particular al usarse en vacío y ensuciarlo de este modo o depositarse de nuevo sobre otros componentes y por consiguiente modificar sus propiedades superficiales. Con altas temperaturas se puede descomponer el adhesivo y sus componentes pueden llegar a los gases de proceso o líquidos de proceso e influir por consiguiente en el desarrollo del proceso. En aplicaciones de la capa de grafito como junta de estanqueidad a presión pueden aparecer problemas de fugas debido al comportamiento mecánico diferente del adhesivo y capa de grafito. Adicionalmente, en el caso de la descomposición y disolución del adhesivo se reduce la fuerza de apriete entre las bridas estancas y con ello el efecto de obturación. Si el adhesivo se vuelve blando por temperatura demasiado elevada o se disuelve, entonces las capas de grafito se pueden desplazar o disolverse totalmente. Por consiguiente, en el caso de microelectrodos fijados individualmente se descompondría la estructura completa.

En algunas aplicaciones se debe garantizar un contacto eléctrico entre el soporte de metal y la capa de grafito, de modo que se deben usar adhesivos eléctricamente conductores, lo que está ligado con elevados costes.

En algunos procedimientos se deben prensar entre sí las capas cubiertas con adhesivo (soporte de metal y grafito) a presiones muy elevadas y temperaturas muy elevadas durante largo tiempo, como por ejemplo durante varias horas. Esto tiene como consecuencia elevados costes de producción, por ejemplo, debido al diseño correspondientemente costoso de las prensas necesarias.

Además, se conoce una conexión de grafito y metal mediante soldadura en vacío. Este procedimiento se debe llevar a cabo bajo condiciones de vacío y por ello es muy laborioso. En procedimientos que combinan la soldadura en vacío con un proceso de carbonización, se esparcen polvos metálicos y se funde a temperatura muy elevada, lo que lo hace todavía más laborioso.

El documento EP 0 616 884 A2 describe un procedimiento para la producción de un material laminado de metal y grafito.

La patente americana US 5,100,049 describe un procedimiento para la conexión de composites de carbono - carbono y matriz de metal.

5 La patente americana US 5,322,740 describe una conexión de fase sólida entre aleaciones de aluminio y/o aleaciones de magnesio y un procedimiento para su producción.

La patente americana US 5,113,052 describe un procedimiento para la soldadura en horno de dos piezas en atmósfera enriquecida o controlada.

10 El objeto de la invención es proporcionar un procedimiento para el establecimiento de una conexión entre el grafito y un metal de soporte, así como un elemento compuesto que comprende una capa de grafito y una capa de metal de soporte, donde la conexión debe ser más fuerte que la resistencia propia del grafito bajo sollicitación térmica y mecánica. Esta conexión entre grafito y metal de soporte debe poseer una buena conductividad eléctrica y conductividad térmica, así como ser estable químicamente. Su comportamiento elasto-plástico debe ser despreciablemente pequeño en comparación a aquel de la capa de grafito.

15 El objeto se consigue con un procedimiento según la reivindicación 1.

Según el procedimiento según la invención se establece una conexión entre una capa de metal de soporte y una capa de grafito mediante las etapas siguientes:

- facilitación de una capa de metal de soporte

- facilitación de una capa de grafito a conectar con la capa de metal de soporte

20 - disposición de una capa adhesiva, que contiene al menos un metal, entre la capa de metal de soporte y la capa de grafito

25 - conexión de la capa de metal de soporte con la capa de grafito, donde la conexión comprende una etapa de difusión, en la que el al menos un metal de la capa adhesiva se estimula para penetrar al menos parcialmente en la capa de grafito y la capa de metal de soporte, donde el metal permanece en la fase sólida, donde la capa adhesiva contiene plata como metal.

30 De este modo, según la invención se obtiene una conexión de alta resistencia, alta conductividad eléctrica y térmica y alta estabilidad química sin una conexión adhesiva en la que se necesita un adhesivo. La invención también se las arregla sin una conexión mecánica, en la que la capa de grafito se engancha en una superficie de metal de soporte rugosa y especialmente estructurada mediante prensado, no obstante, donde según la invención puede estar presente una conexión mecánica adicionalmente a la conexión mediante la etapa de difusión. Al contrario de otros métodos de conexión, el metal no se funde a este respecto, sino que permanece en la fase sólida. Preferentemente, el metal permanece completamente en la fase sólida durante todo el procedimiento.

35 El término de "capas de grafito" comprende filmes delgados, autoportantes o aplicados, láminas o también placas gruesas. El término de las capas debe clarificar que se pueden conectar entre sí las zonas cerca de la superficie de grafito y de metal de soporte. Esto puede ser en particular una zona plana, que se debe conectar con otra zona plana.

Configuraciones y perfeccionamientos ventajosos del procedimiento según la invención están indicados en las reivindicaciones dependientes.

Preferentemente la capa adhesiva está hecha de Ag.

40 El efecto adhesivo se basa en la penetración de átomos de Ag de la capa adhesiva en la capa de metal de soporte y capa de grafito a conectar, adyacente en ambos lados. En ambos materiales, los átomos de metal adoptan posiciones de red o red intermedia y forman preferiblemente enlaces con los átomos locales. El enlace de Ag con grafito se puede explicar mediante la estructura de red por capas del grafito. Dentro del plano de capa del grafito actúan fuertes enlaces covalentes σ entre los átomos de carbono (C), que se basan en la configuración de enlaces híbridos sp^2 . En este caso, los orbitales p_x y p_y se orientan de forma trigonal. La distancia entre los átomos de C adyacentes es en los planos de grafito de 0,142 nm. El tercer electrón del orbital p_z señala perpendicularmente a este plano de capa y conduce a un enlace π débil que se basa en fuerzas de Van-der-Waals. La distancia de átomos entre los planos es con 0,335 nm claramente mayor que dentro de los planos. Presumiblemente, con el electro del orbital p_z se combinan de forma adecuada los átomos de Ag con solo un electrón s exterior y se pueden unir por ello muy fuertemente. Por otro lado, la distancia relativamente grande entre los planos de grafito permite un almacenamiento de los átomos de Ag pese a su gran diámetro de 0,306 nm y conduce a la conexión mejorada entre átomos de Ag almacenados profundamente en la capa de grafito y situados cerca de una superficie de la capa de grafito, lo que genera el enlace estable de la capa adhesiva con el grafito. Por otro lado, la constante de red comparablemente grande de 0,41 nm en cristales de Ag posibilita el almacenamiento de átomos de C sobre puestos de red intermedia, lo que puede contribuir al dentado de ambas capas. Debido a este proceso de enlace ya puede ser suficiente preferentemente una capa de Ag compuesta

de solo algunas capas de átomos para el establecimiento de una conexión estable de grafito y metal de soporte.

Según una forma de realización preferida, la capa de metal de soporte contiene al menos un metal de soporte o una aleación de metal de soporte del grupo formado por hierro, acero, acero inoxidable, oro, paladio, titanio, cobre, bronce, latón, cromo, níquel, zinc, estaño, indio, manganeso, aluminio, plomo y cadmio o una aleación con al menos uno de estos metales o aleaciones de metales de los mismos. Para la aplicación en baterías, a excepción de plomo y cadmio, pueden ser apropiados todos los otros materiales de baterías conocidos.

El enlace de la plata de la capa adhesiva con un soporte de acero inoxidable se basa presumiblemente en la aleabilidad de la Ag con el cromo (Cr) y con el níquel (Ni), pero no en el enlace con el hierro (Fe), con el que es difícilmente aleable. Dado que el acero inoxidable posee fracciones de Cr y Ni, es posible un enlace de Ag en las superficies cerca del soporte de acero inoxidable. Las distancias de red en el acero inoxidable se sitúan en el rango de 0,3 nm y permiten por consiguiente presumiblemente la ligazón de átomos de Ag también sobre puestos de la red intermedia. Lo correspondiente es válido para otros metales de soporte o aleaciones de metales de soporte preferiblemente arriba mencionados. A este respecto, los metales mencionados no deben constituir el componente principal de una aleación, sino que pueden estar presentes en el rango de solo hasta el 10% en peso, en particular hasta el 5% en peso o todavía contenidos más bajos, como por ejemplo el 0,1 a 3% en peso.

Adicionalmente al uso de plata como metal en la capa adhesiva puede estar contenido p. ej. un metal que se comporta, con vistas a su comportamiento de enlace y/o comportamiento de difusión en referencia a la capa de metal de soporte y/o capa de grafito, de forma similar a la plata. Bajo un comportamiento similar, en el marco de la invención se entiende que el metal se puede difundir en la capa de grafito y de metal de soporte y asume al menos parcialmente las relaciones de enlace y almacenamiento descritas más arriba para átomos de plata, como por ejemplo, el enlace de electrones. Metales preferidos o componentes de aleaciones de la capa adhesiva pueden ser, por ejemplo, oro (Au), cobre (Cu), platino (Pt), indio (In), cromo (Cr), molibdeno (Mo), silicio (Si), germanio (Ge), estaño (Sn) y plomo (Pb). Au y Cu tienen como Ag capas de átomos completamente llenas y solo poseen un único electrón exterior libre sobre la capa s, que puede formar un enlace con los orbitales sp del grafito. Por ejemplo, se conocen los enlaces de Ag_2C_2 y Cu_2C_2 . Cr y Mo poseen igualmente un electrón s exterior y las capas llenas o semillenas, de modo que estos también muestran un comportamiento similar a la plata. Si, Ge, Sn y Pb como elementos del cuarto grupo del sistema periódico pueden formar enlaces con el grafito mediante hibridación con los electrones p. Estos elementos pueden substituir parcialmente los átomos de C en el plano de grafito, siempre y cuando su diámetro de átomo no sea demasiado grande. Igualmente, los enlaces se pueden formar mediante compuestos de azufre, como Ag_2S_2 . El azufre aparece con frecuencia como impureza, por ejemplo, en carbono.

Preferiblemente la etapa de difusión comprende una etapa de prensado y/o una etapa de calentamiento. Bajo presión y/o una temperatura elevada, el al menos un metal de la capa adhesiva se estimula para difundirse en la capa de grafito y la capa de metal de soporte. A este respecto, la presión necesaria y/o la temperatura necesaria depende del metal de la capa adhesiva y del al menos un metal de soporte de la capa de metal de soporte.

Ventajosamente, antes de la etapa de difusión, la capa adhesiva presenta un espesor de entre 1 nm y 100 nm, en particular entre 2 y 80 nm, preferiblemente entre 5 y 50 nm. Cuanto menor es el espesor de capa, tanto menor es el requerimiento de tiempo y coste de material, que es necesario para la facilitación de la capa adhesiva, por ejemplo, mediante revestimiento. Las capas delgadas de este tipo reaccionan de forma insensible a las tensiones de cizallamiento debido a la así denominada ley de las tensiones de cizallamiento asociadas. Las tensiones de cizallamiento se provocan por fuerzas transversales y aparecen en el caso de sollicitaciones a flexión, como por ejemplo durante un enrollamiento. Una estructura de sándwich doblada está sometida por consiguiente en el plano de conexión a una tensión de cizallamiento, que hablando gráficamente intenta empujar las capas conectadas una sobre otra, lo que puede conducir a un desprendimiento de la capa adhesiva. Cuanto más delgada es la capa adhesiva, tanto más elevada es la capacidad de resistencia mecánica contra un desprendimiento. Por el contrario, un espesor más grueso permite ventajosamente crear una capa intermedia más ancha en la capa de grafito y/o capa de metal de soporte, en la que está difundido el metal de la capa adhesiva, lo que puede elevar la resistencia mecánica de la conexión originada.

Según una primera alternativa, antes de la etapa de difusión, la capa adhesiva está aplicada o se aplica sobre al menos una de las dos capas a conectar (capa de grafito, capa de metal de soporte). Esto posibilita en particular una disposición de una capa adhesiva especialmente delgada en el rango de nanómetros.

Preferentemente, la capa adhesiva está aplicada o se aplica por un procedimiento de deposición física en fase vapor (PVD) y/o deposición química en fase vapor (CVD) sobre al menos una de las dos capas a conectar. Los procedimientos de revestimiento de este tipo posibilitan de manera convencional una aplicación de capas homogéneas y de alta calidad ya con el espesor de pocas capas de átomos hasta varios cientos de nanómetros. La CVD y PVD son, por ejemplo, una evaporación térmica, procedimiento de pulverización (también denominado pulverización catódica), revestimiento de iones, técnica de haz de racimo (ICBD). Mediante el procedimiento CVD y PVD se conecta el metal de la capa adhesiva ya de forma íntima con los elementos al menos de una de las dos capas a conectar. De este modo es necesaria una menor energía de activación, para permitir que el metal se siga difundiendo. Por consiguiente, el mecanismo de conexión de la presente invención se diferencia del procedimiento de soldadura convencional u otras técnicas de conexión convencionales.

Como procedimiento de revestimiento también entran en consideración otros procedimientos de revestimiento, como galvanización, en particular cuando se desean capas más gruesas hasta el rango de micrómetros como capas adhesivas. Pero, al contrario a los procedimientos de soldadura conocidos, en el caso de capas más gruesas en el marco de la invención tampoco se produce la aparición de una fase líquida.

- 5 Según una segunda alternativa, como capa adhesiva se usa una lámina autoportante, que contiene el metal, como por ejemplo una lámina de metal. De este modo se evita una etapa de revestimiento, lo que puede ser ventajoso, por ejemplo, cuando no está a disposición una instalación de revestimiento.

- 10 Preferentemente, un tiempo de prensado de la etapa de prensado se sitúa en hasta 60 min, en particular entre 5 y 50 min, en particular entre 10 y 40 min. Por ejemplo, también puede ser solo de 1 min. Por consiguiente, en un tiempo relativamente corto se puede lograr una difusión del metal. Para someter la conexión a una sollicitación por temperatura lo más baja posible, puede ser ventajosa un tiempo de prensado largo en conexión con una baja temperatura. Las altas temperaturas permiten acortar los tiempos de prensado necesarias para el establecimiento de una conexión estable.

- 15 Ventajosamente, una temperatura de calentamiento de la etapa de calentamiento se sitúa entre un tercio del punto de fusión del metal y por debajo del punto de fusión del metal de la capa adhesiva. De este modo se evita una licuación de la capa adhesiva o del metal en la capa adhesiva, no obstante, el metal se estimula tan fuertemente que puede tener lugar una etapa de difusión. De forma especialmente preferida, una temperatura de calentamiento se sitúa entre la mitad del punto de fusión en °C y 5 K por debajo del punto de fusión, en particular hasta 20 K, en particular 50 K por debajo del punto de fusión.

- 20 Al usar Ag como metal en la capa adhesiva es ventajosa una temperatura de calentamiento por encima de 300 °C, en particular por encima de 400 °C, en particular por encima de 500 °C. Al usar metales con bajo punto de fusión también puede ser ventajosa una temperatura de calentamiento correspondientemente más baja, en el caso de metales con punto de fusión más elevado una más elevada. Debido a la sensibilidad a la temperatura del grafito a temperaturas desde 550 °C, en particular desde 600 °C, el procedimiento se puede llevar a cabo ventajosamente en vacío.

- 25 Puede ser ventajoso aplicar la capa adhesiva parcialmente por zonas o en toda la superficie sobre la capa de grafito y sobre la capa de soporte de metal. En particular, la capa adhesiva se puede aplicar de forma estructurada sobre la capa de grafito y la capa de metal de soporte, como por ejemplo por puntos o por secciones. Esto puede ser ventajoso, por ejemplo, para compensar tensiones locales. También puede ser ventajosa una aplicación parcialmente por secciones, a fin de no cerrar las aberturas ya presentes. Esto puede ser ventajoso en tamices o también membranas, por ejemplo, para celdas de combustible.

Además, la capa de metal de soporte puede estar presente de forma estructurada, como por ejemplo en forma de islas o puntos.

Puede ser ventajoso que la capa de metal de soporte se aplique sobre la capa adhesiva por medio de un procedimiento de revestimiento.

- 35 Por medio de un procedimiento de revestimiento se pueden estructurar especialmente bien las capas de metal de soporte, así como aplicarse con espesores uniformes.

- 40 Preferentemente, la capa de metal de soporte se aplica mediante un procedimiento de deposición física y/o química en fase vapor sobre la capa adhesiva, en particular mediante un procedimiento de deposición ya descrito arriba para una aplicación de la capa adhesiva. Aquí también puede ser ventajoso en particular un procedimiento de epitaxia. Ventajosamente, con ello se pueden producir capas de metal de soporte con dimensiones en el rango de nanómetros o rango de subnanómetros, pero también capas más gruesas hasta 1 µm. Las capas gruesas de este tipo pueden ser ventajosa cuando se desean capas muy homogéneas en particular con vistas al espesor. Con vistas a la homogeneidad de una conductividad eléctrica en el dispositivo plano de capas puede ser ventajosa una capa gruesa de este tipo.

- 45 Preferentemente, la al menos una capa de grafito comprende una lámina de grafito, que comprende grafito expandido comprimido al menos parcialmente. La lámina de grafito es especialmente flexible y ventajosamente también se puede conectar con capas de metal de soporte no planas, sin que el elemento compuesto originado esté bajo tensiones mecánicas.

- 50 Ventajosamente, la etapa de prensado comprende una etapa de calandrado. Mediante el calandrado se pueden evitar ventajosamente las inclusiones de aire entre las capas individuales, así como establecerse también conexiones de gran superficie. Por medio del calandrado se puede llevar a cabo un proceso de fabricación continuo. Pero también pueden ser ventajosos otros procedimientos de prensado, que también se pueden llevar a cabo en vacío para evitar inclusiones de aire.

- 55 El objeto se consigue además con un elemento compuesto según la reivindicación 15. Un elemento compuesto según la invención comprende una capa de grafito y una capa de metal de soporte, que están conectadas por medio de una capa adhesiva, en particular según un procedimiento según la invención, donde la capa adhesiva comprende al menos

planta, que está estimulada mediante una etapa de difusión para penetrar al menos parcialmente en la capa de grafito y la capa de metal de soporte.

Una configuración ventajosa del elemento compuesto está especificada en las reivindicaciones dependientes.

5 Preferentemente, el metal de la capa adhesiva está difundido al menos parcialmente en la capa de grafito y capa de metal de soporte, de modo que la capa adhesiva está formada al menos esencialmente exclusivamente por una capa intermedia, que se compone esencialmente de una mezcla del metal y el metal de soporte y/o del metal y el grafito.

El elemento compuesto se usa ventajosamente para un elemento de obturación. Buena adherencia, alta resistencia química y resistencia a la temperatura son muy ventajosas para un elemento de obturación.

10 Otras configuraciones y perfeccionamientos ventajosos están representados en el ejemplo de realización, que se explica mediante la única figura, que muestra esquemáticamente una sección transversal de un elemento compuesto según la invención, producido según un procedimiento según la invención.

15 Una chapa de acero inoxidable como capa de metal de soporte 1 se limpia de grasa, polvo, etc. con un procedimiento convencional. Con pulverización de magnetrón PVD se aplica una capa de Ag delgada de 10 nm como capa adhesiva 2 sobre la capa de metal de soporte 1 bajo las condiciones de vacío a temperatura ambiente. Luego, una lámina de grafito se presiona como capa de grafito 3 bajo condiciones de temperatura y presión moderadas en el lado de la capa de metal de soporte 1 provista con la capa adhesiva de Ag. El apriete de la capa de grafito 3 se realiza al aire. Para el apriete se usa un dispositivo de prensado calentable convencional (no representado). Mediante el apriete y calentamiento se logra una etapa de difusión, en la que el metal 4 se difunde de la capa adhesiva tanto en la capa de grafito 3, como también la capa de acero inoxidable, lo que está indicado por las flechas 8 en la figura. De este modo, 20 en la zona de la capa de grafito y la capa de metal de soporte 1 adyacente a la capa adhesiva se produce respectivamente una capa intermedia 7, en la que está presente de forma difundida el metal 4 de la capa adhesiva.

Se establece una conexión 5, o un elemento compuesto 6 a partir de una lámina de acero inoxidable gruesa de 50 μm , revestida en ambos lados con Ag, que se pone entre dos capas de grafito gruesas de 0,8 mm. A una temperatura de calentamiento de 436 °C, una presión de apriete de $5,4 \times 10^6$ Pa y una duración de apriete de 10-30 minutos se 25 obtienen conexiones mecánicamente estables y por consiguiente elementos compuestos. Por medio de tests de desprendimiento se comprueba que la conexión adhesiva es más fuerte que la resistencia propia del grafito. Para procesos de optimización se debe tener en cuenta que, con vistas a la profundidad de penetración del metal en las capas el tiempo t actúa con $\sqrt{t}$, pero la temperatura de forma exponencial. En otros tests se ha acortado gradualmente la duración de apriete a presión constante de $5,4 \times 10^6$ Pa y temperatura constante de 436 °C. Incluso con duraciones de apriete de solo 5 minutos se pudieron obtener todavía resultados de adherencia suficientes. En el caso de una 30 presión reducida de $2,4 \times 10^6$ Pa y una temperatura de calentamiento de 436 °C, la duración de apriete mínima para una adherencia suficiente se situó en los 10 minutos.

La resistencia mecánica de las conexiones se determina con un test de rotura. En el caso de adherencia muy buena, 35 la capa de grafito se rompe mientras que la capa de metal de soporte está ocupada completamente con grafito que se adhiere sobre ella. En el caso de peor adherencia, la ocupación de la capa de metal de soporte con carbono es menor del 100%. Otros tests dieron como resultado que también con fuerzas de cizallamiento mayores que las arriba mencionadas estuvo presente una muy buena adherencia de las capas conectadas.

Las ventajas del procedimiento según la invención son múltiples. La capa adhesiva de Ag se puede aplicar sobre la 40 capa de grafito o, como en el ejemplo arriba mencionado, sobre el soporte de metal. Como consecuencia de su espesor de capa bajo se excluye un encogimiento, deformación o fluencia de la capa adhesiva. Esto es una gran ventaja respecto al comportamiento de capas adhesivas típicas, cuyos espesores de capa se sitúan entre 0,2 μm y varios micrómetros y por consiguiente son 10 a 1000 veces más gruesas que el espesor preferido de la capa adhesiva. Por consiguiente, se puede ahorrar material de manera considerable mediante el procedimiento según la invención. Por 45 tanto, en una variante del ejemplo de realización también se pueden usar capas adhesivas más gruesas. En esta variante, al aplicar fuerzas de cizallamiento se rompe la capa de grafito en sí, lo que grava la muy buena adherencia de la capa de grafito sobre la capa de metal de soporte.

El apriete de la capa de grafito sobre el metal de soporte se realiza con presiones claramente menores que en los procedimientos convencionales. Por consiguiente, con el procedimiento según la invención también se pueden usar 50 máquinas diseñadas menos potentes. Para la aplicación como material de obturación se produce a este respecto otra ventaja, puesto que ventajosamente la capa de grafito misma no se solidifica o solo ligeramente y así mantiene además su comportamiento de deformación elasto-plástico.

En una variante del ejemplo de realización, mediante la vaporización a alto vacío se aplica una capa de plata de un espesor de 25 nm. En otra variante, antes de la pulverización de Ag se aplica una capa de Cr con espesor de 20 nm. Esta puede servir ventajosamente como promotor de adhesión para la capa adhesiva aplicada a continuación. En el 55 caso de acero no aleado, que incluso no contiene cromo, el cromo puede servir de forma especialmente adecuada como promotor de adhesión. El espesor de capa se puede ajustar con todos los procedimientos CVD y PVD conocidos exactamente en el rango de nanómetros, pero si es deseable en el rango de varios cientos de nanómetros

La capa adhesiva de Ag es térmicamente estable hasta cerca del punto de fusión de la plata, que se sitúa en 916 °C. Por consiguiente, es muy superior a las conexiones adhesivas habituales. Las temperaturas límite típicas de las conexiones adhesivas típicas se sitúan por debajo de 200 °C. Por consiguiente, el sistema conectado según la invención de grafito / metal de soporte se usa a temperaturas claramente más elevadas de lo habitual hasta ahora, hasta el límite superior de 450 °C. Este límite se deduce de la fuerte tendencia del grafito a la oxidación a temperaturas por encima de 450 °C. Este límite superior no se menoscaba por la Ag debido al elevado punto de fusión.

Al contrario de los adhesivos habituales, la capa adhesiva de Ag no sale en forma de gas en vacío y por consiguiente reviste los componentes o interviene en procesos químicos.

Dado que la plata es muy estable químicamente, la capa adhesiva de Ag es químicamente mucho más estable que las conexiones adhesivas habituales. Por consiguiente, por ejemplo, las juntas de estanqueidad producidas mediante el procedimiento según la invención también se pueden usar en procesos químicos agresivos, lo que no es posible hasta ahora.

Dado que la Ag como metal establece una conexión adhesiva eléctricamente conductora, el sistema de grafito / soporte de metal es en conjunto eléctricamente conductor.

El elemento compuesto, que se obtiene según el ejemplo de realización, se usa como elemento de obturación según una variante. Buena adherencia, alta resistencia química y resistencia a la temperatura son muy ventajosas para un elemento de obturación. En particular, la junta de estanqueidad está construida de forma multicapa, donde preferiblemente dos capas de grafito forman las dos capas exteriores de una estructura multicapa.

El procedimiento para la aplicación de la capa adhesiva es comparativamente sencillo. Con las técnicas de pulverización o deposición en fase vapor también se pueden revestir metales de soporte de gran superficie. Para ello, solo se requiere una única etapa de trabajo sin tratamiento ulterior. No es necesaria una conservación frente a oxígeno o un tratamiento posterior en vacío. Los componentes individuales se pueden almacenar al aire de forma intermedia durante un tiempo más prolongado. El prensado del grafito también es posible bajo atmósfera de aire. Por consiguiente, se suprime la necesidad de una cara instalación de tratamiento en vacío, como p. ej. en procedimiento de soldadura en vacío. Respecto a otros procedimientos de soldadura convencionales u otros procedimientos, en los que aparece una fase líquida de un metal conector, también se puede llevar a cabo el procedimiento según la invención con un esfuerzo claramente menor.

La duración de apriete de la capa de grafito y el soporte de metal es con 5-30 minutos en este procedimiento según la invención, comparable con duraciones de apriete en el rango de horas en otros procedimientos de pegado, relativamente corta y por consiguiente muy económica.

La invención no está limitada a las formas de realización descritas en concreto, sino que comprende cualquier combinación posible de las características mencionadas en la descripción, los ejemplos y las reivindicaciones, en tanto que estas sean razonables técnicamente y estén incluidas en las reivindicaciones.

En particular, la invención también comprende las presiones, temperaturas y duraciones de procedimiento, que no se mencionan expresamente, pero en las que se pueden establecer conexiones óptimas con el respectivo metal de la capa adhesiva.

REIVINDICACIONES

1. Procedimiento para el establecimiento de una conexión (5) entre una capa de metal de soporte (1) y una capa de grafito (3), que comprende las etapas siguientes:

- facilitación de una capa de metal de soporte (1)

5 - facilitación de una capa de grafito (3) a conectar con la capa de metal de soporte (1)

- disposición de una capa adhesiva (2), que contiene al menos un metal (4), entre la capa de metal de soporte (1) y la capa de grafito (3)

10 - conexión de la capa de metal de soporte (1) con la capa de grafito (3), donde la conexión comprende una etapa de difusión desencadenada por calor, en la que el metal (4) se estimula para penetrar al menos parcialmente en la capa de grafito (3) y la capa de metal de soporte (1), donde el metal permanece en la fase sólida, caracterizado por que la capa adhesiva (2) contiene plata como metal (4).

2. Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por que la

15 capa de metal de soporte (1) contiene al menos un metal de soporte o una aleación de metal de soporte del grupo formado por hierro, acero, acero inoxidable, oro, paladio, titanio, cobre, bronce, latón, cromo, níquel, zinc, estaño, indio, manganeso, aluminio o una aleación con al menos uno de estos metales de soporte o aleaciones de metales de soporte de los mismos.

3. Procedimiento según una o varias de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que la etapa de difusión comprende una etapa de prensado y/o una etapa de calentamiento.

20 4. Procedimiento según una o varias de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que antes de la etapa de difusión, la capa adhesiva (2) presenta un espesor de entre 1 nm y 100 nm, en particular entre 2 y 80 nm, en particular entre 5 y 50 nm.

5. Procedimiento según una o varias de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que antes de la etapa de difusión, la capa adhesiva (2) está aplicada o se aplica sobre al menos una de las dos capas (1, 3) a conectar.

25 6. Procedimiento según la reivindicación 5, caracterizado por que la capa adhesiva (2) está aplicada o se aplica mediante un procedimiento de deposición física y/o química en fase vapor sobre al menos una de las dos capas (1, 3) a conectar.

7. Procedimiento según una o varias de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que como capa adhesiva (2) se usa una lámina autoportante que contiene el metal (4).

30 8. Procedimiento según la reivindicación 3, caracterizado por que el tiempo de prensado de la etapa de prensado se sitúa en hasta 60 min, en particular entre 5 y 50 min, en particular entre 10 y 40 min.

9. Procedimiento según la reivindicación 3, caracterizado por que la temperatura de calentamiento de la etapa de calentamiento se sitúa entre un tercio del punto de fusión del metal y por debajo del punto de fusión del metal (4) de la capa adhesiva (2), en particular entre la mitad del punto de fusión y 5 K por debajo del punto de fusión.

35 10. Procedimiento según la reivindicación 9, caracterizado por que la temperatura se sitúa por encima de 300 °C, en particular por encima de 400 °C, en particular por encima de 500 °C.

11. Procedimiento según una o varias de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que la capa de metal de soporte (1) se aplica sobre la capa adhesiva (2) por medio de un procedimiento de revestimiento.

12. Procedimiento según la reivindicación 11, caracterizado por que la capa de metal de soporte (1) se aplica mediante un procedimiento de deposición física y/o química en fase vapor sobre la capa adhesiva (2).

40 13. Procedimiento según una o varias de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que la etapa de prensado comprende una etapa de calandrado.

45 14. Procedimiento según una o varias de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que un elemento compuesto (6) a partir de al menos una capa de grafito (3) y de al menos una capa de metal de soporte se produce con una sucesión alternante de al menos una capa de metal de soporte (1) y de al menos una capa de grafito (3), donde como una capa exterior del elemento compuesto se usa una capa de grafito (3) y/o una capa de metal de soporte (1).

50 15. Elemento compuesto (6) que comprende al menos una capa de grafito (3) y al menos una capa de metal de soporte (1), que están conectadas por medio de una capa adhesiva (2), caracterizado por que la capa adhesiva (2) comprende al menos plata, que se ha estimulado mediante una etapa de difusión para penetrar al menos parcialmente en la capa de grafito (3) y la capa de metal de soporte (1).

16. Elemento compuesto (6) según la reivindicación 15, caracterizado por que la plata de la capa adhesiva (2) está completamente difundida en la capa de grafito (3) y capa de metal de soporte (1), de modo que la capa adhesiva (2) está formada exclusivamente por una capa intermedia (7), que se compone de una mezcla de la plata (4) y el metal de soporte y de la plata y el grafito.

5 17. Elemento compuesto (6) según la reivindicación 15 o 16, caracterizado por que la al menos una capa de grafito (3) comprende una lámina de grafito, que comprende grafito expandido comprimido al menos parcialmente.

18. Uso de un elemento compuesto (6) según una o varias de las reivindicaciones 15 a 17 como elemento de obturación.

