

DOI: 10.13801/j.cnki.fhclxb.20191113.005

BN 表面沉积纳米 Sn 对 BN/环氧树脂复合材料 导热绝缘性能的影响

汪蔚¹, 曹建达^{*1}, 郑敏敏², 陈婷婷², 杨李懿²

(1. 嘉兴学院 材料与纺织工程学院, 嘉兴 314001; 2. 浙江荣泰科技企业有限公司, 嘉兴 314007)

摘 要: 采用液相还原法, 制备了 BN 表面沉积纳米 Sn 粒子 (BN-Sn NPs) 杂化材料, 用于环氧树脂 (EP) 的导热绝缘填料。BN-Sn NPs 表面纳米 Sn 的粒径和熔点分别为 10~30 nm 和 166.5~195.3℃。BN 表面沉积纳米 Sn 后, 粉体 Zeta 电位及压片的导热系数增加, EP 滴在压片表面的接触角降低。在 BN-Sn NPs/EP 复合材料固化过程中, BN-Sn NPs 表面纳米 Sn 熔融烧结, 有利于填料相互桥联在一起, 降低接触热阻, 并改善界面性能, 从而提高 BN-Sn NPs/EP 复合材料的导热系数。当填料体积含量为 30vol% 时, BN-Sn NPs/EP 复合材料的导热系数达 1.61 W(m·K)⁻¹, 比未改性 BN/EP 复合材料的导热系数 (1.08 W(m·K)⁻¹) 提高了近 50%。Monte Carlo 法模拟表明, BN 和 BN-Sn NPs 在 EP 基体中的接触热阻 (R_c) 分别为 6.1×10⁶ K·W⁻¹ 和 3.7×10⁶ K·W⁻¹。与未改性 BN/EP 复合材料相比, BN-Sn NPs/EP 复合材料的介质损耗增加, 介电强度及体积电阻率降低, 但仍具有良好电绝缘性能。

关键词: 复合材料; 环氧树脂 (EP); BN; 纳米 Sn; 杂化材料; 导热性能

中图分类号: TB332 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-3851(2020)07-1547-08

Effects of BN surface deposited with nano Sn on thermal conductivity and electrical insulation of BN/epoxy composites

WANG Wei¹, CAO Jianda^{*1}, ZHENG Minmin², CHEN Tingting², YANG Liyi²

(1. College of Materials and Textile Engineering, Jiaxing University, Jiaxing 314001, China;

2. Zhejiang Rongtai Technical Industry Co. Ltd., Jiaxing 314007, China)

Abstract: Hybrid materials composed of Sn nano particles deposited on BN surface (BN-Sn NPs) were constructed as thermal conductive and electrical insulating fillers for epoxy(EP) by liquid-phase chemical reduction method. The diameter and melting point of Sn nano particles on BN-Sn NPs surface are 10~30 nm and 166.5~195.3℃, respectively. Both the Zeta potential of BN-Sn NPs powder and thermal conductivity of BN-Sn NPs pressed sheet increase, while the contact angle of EP dropped on BN-Sn NPs pressed sheet decreases after BN surface deposited with nano Sn. During the curing process of BN-Sn NPs/EP composites, the nano Sn particles on BN-Sn NPs surface melt and sinter, simultaneously bridge the individual fillers, which results in the lower thermal contact resistance between the fillers, and the improved interfacial behavior. The feature of enhanced thermal conductivity reflects in BN-Sn NPs/EP composites. When the filler volume fraction is 30vol%, the thermal conductivity of BN-Sn NPs/EP composites reaches 1.61 W(m·K)⁻¹, nearly 50% higher than that of the pristine BN/EP composites (1.08 W(m·K)⁻¹). The results of Monte Carlo simulation demonstrate that the thermal contact resistance (R_c) of BN and BN-Sn NPs in the EP matrix are 6.1×10⁶ K·W⁻¹ and 3.7×10⁶ K·W⁻¹, respectively. The BN-Sn NPs/EP composites exhibit higher dielectric loss and

收稿日期: 2019-08-21; 录用日期: 2019-10-22; 网络首发时间: 2019-11-13 15:01:29
网络首发地址: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20191113.005>
基金项目: 浙江省基础公益研究计划项目 (LGG19E030006); 嘉兴市应用性基础研究专项 (2019AD32004)
通信作者: 曹建达, 硕士, 副教授, 研究方向为聚合物基复合材料 E-mail: dacao88@163.com
引用格式: 汪蔚, 曹建达, 郑敏敏, 等. BN 表面沉积纳米 Sn 对 BN/环氧树脂复合材料导热绝缘性能的影响 [J]. 复合材料学报, 2020, 37(7): 1547-1554.
WANG Wei, CAO Jianda, ZHENG Minmin, et al. Effects of BN surface deposited with nano Sn on thermal conductivity and electrical insulation of BN/epoxy composites[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2020, 37(7): 1547-1554(in Chinese).

lower dielectric strength and volume resistivity than that of the pristine BN/EP composites, while still have good electrical insulating properties.

Keywords: composites; epoxy(EP); BN; nano Sn; hybrid materials; thermal conductivity

绝缘材料是电气设备的关键基础材料，其性能直接影响设备运行的可靠性和使用寿命。电气设备运行过程中，由于电流热效应产生的热量必须通过绝缘层及时向外传导或散发出去，否则会导致温度升高，影响工作稳定性，严重时甚至发生故障或事故^[1-3]。现代电气设备趋于向高功率、小体积、轻量化方向发展，导致其在有限的体积内产生了更多的热量，这些热量如果不能及时散失，将会严重影响设备运行的可靠性和稳定性。采用高导热绝缘材料是解决电气设备结构散热问题的最有效途径^[4-6]。环氧树脂(EP)在电气绝缘中的应用最为广泛，但纯 EP 材料的导热系数低($0.20\text{ W}(\text{m}\cdot\text{K})^{-1}$ 左右)，越来越难以满足设备及时高效的散热要求，成为电气产业发展的主要技术瓶颈之一。

为满足新能源、轨道交通、智能制造等领域用新型电气设备及时高效的散热要求，高导热 EP 绝缘材料的研发及应用受到国内外学者及产业界的高度关注，按制备工艺可分为本征型和填充型两类^[7-8]。本征型导热绝缘 EP 制备工艺复杂，产品熔点高、黏度大，需要特殊的成型加工设备，难以适应电气设备绝缘浸渍和灌封浇注的工艺性能要求，距离工业化应用尚有很大距离^[9-10]。填充型工艺简单，结构性能可按需设计，易于工业化生产，是目前制备高导热 EP 绝缘材料的主流方法^[11-13]。常用填料有 Al_2O_3 、 MgO 、 AlN 、BN 等。其中，BN 不仅具有高导热系数($280\text{ W}(\text{m}\cdot\text{K})^{-1}$)和高电击穿强度，且具有与纯 EP 相当的高电阻率、低介电常数和介电损耗，是制备高导热 EP 绝缘材料的理想填料。尽管 BN 具有很高的热导率，但实际 BN 填充 EP 热导率的提高却十分有限。如：BN 填充量为 20vol% 的 BN/EP 复合材料导热系数在 $1.3\text{ W}(\text{m}\cdot\text{K})^{-1}$ 左右，还不到纯 BN 导热系数的 0.5%，并未体现出 BN 的高热导率优势^[14-16]。这主要是由于 BN 填料之间及 BN 与聚合物基体之间存在很高的接触热阻及界面热阻。本文采用液相还原法制备 BN 表面沉积纳米 Sn 粒子(BN-Sn NPs)杂化材料，然后与 EP 复合，研究了 BN 表面沉积纳米 Sn 粒子对 BN-Sn NPs 及 BN-Sn NPs/EP 复合材料结构性能的影响。

1 实验材料及方法

1.1 原材料

环氧树脂(EP)，工业级，牌号 CYD-128，环氧值为 0.51~0.54，岳阳巴陵华兴石化有限公司；BN 填料，工业级，片径为 3~5 μm ，厚度为 300 nm 左右，丹东市化工研究所有限责任公司；一缩二乙二醇(DEG)、双氰胺、辛酸亚锡、硼氢化钠、聚乙烯吡咯烷酮(PVP，质均分子量 $M_w=30\ 000$)，分析纯，阿拉丁生化科技股份有限公司。

1.2 复合材料制备

1.2.1 BN 表面沉积纳米 Sn 粒子(BN-Sn NPs)杂化材料的制备

采用液相还原法制备纳米 Sn^[17]，将纳米 Sn 沉积在 BN 表面，制备 BN-Sn NPs 杂化材料，其制备过程如图 1 所示。具体步骤如下：(1)将 0.2 g PVP、2.5 g 辛酸亚锡、5 g BN 和 100 mL DEG 加入三口瓶中，强烈搅拌 1 h 混合均匀；(2)室温下，将 0.25 g NaBH_4 溶于 30 mL DEG 中，然后以 3 mL/min 的速度滴加到三口瓶中，滴加完毕后，继续强烈搅拌反应 1.5 h；(3)将产物抽滤，用乙醇冲洗 4 次，然后 80℃ 真空干燥 24 h，即得 BN-Sn NPs 灰色粉末。

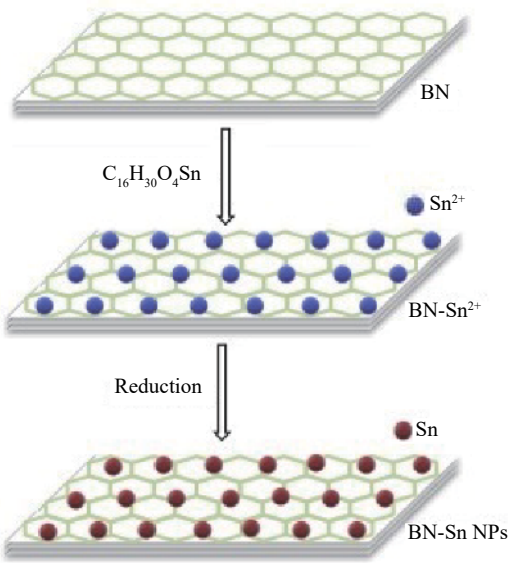


图 1 BN 表面沉积纳米 Sn 粒子(BN-Sn NPs)制备过程示意图
Fig. 1 Diagram of preparation process of Sn nano particles deposited on BN surface (BN-Sn NPs)

1.2.2 BN 和 BN-Sn NPs 薄片的制备

首先, 将 BN 或 BN-Sn NPs 粉末经超声分散于乙醇中; 然后, 缓慢抽滤, 使粉末沉积在聚醚砜滤膜上, 并将滤膜连同沉积的粉体真空干燥; 最后, 将滤膜剥离, 干滤饼进一步采用硫化机, 20 MPa、180℃ 压制厚度约 2 mm 的薄片。

1.2.3 BN/EP 及 BN-Sn NPs/EP 复合材料的制备

将不同含量的导热填料与 9 g EP 和 1 g 双氰胺, 高速搅拌至分散均匀, 倒入模具, 经 80℃ 真空脱泡 60 min 后, 移至烘箱固化 (150℃/2 h+180℃/2 h), 即得 BN/EP 及 BN-Sn NPs/EP 复合材料。

1.3 测试与表征

XPS 能谱采用美国 Thermo Fisher Scientific 公司的 ESCALAB250Xi, 测试条件为: 铝靶 ($K\alpha$, $h\nu=1486.6\text{ eV}$), 阴极加速电压为 14.0 kV, 功率为 250 W, 真空度为 5×10^{-8} Pa。全谱扫描分辨率为 1 eV, 窄谱扫描分辨率为 0.1 eV。XRD 采用德国 Bruker 公司的 D8 ADVANCE, 粉末衍射法, 测试条件为: 铜靶, 电压为 40 kV, 电流为 30 mA, 扫描角度为 $10^{\circ}\sim90^{\circ}$ 。微观形貌观察采用日本 JSM-5600LV 型 FESEM, 喷金后观察。DSC 分析采用德国 Netzsch 公司的 204F1, N_2 氛条件, 样品量为 6~8 mg, 扫描范围为 $30\sim320^{\circ}\text{C}$, 升温速率为 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 。Zeta 电位采用美国 Beckman Coulter Zeta 电位分析仪, 测试前先将粉体样品经超声均匀分散于水中 (浓度为 $3\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$)。EP 在 BN 或 BN-Sn NPs 压片表面的接触角采用北京哈科试验仪器厂 HARKE-SPCA-1 型接触角测量仪, 座滴法观察, EP 液滴量 $2\text{ }\mu\text{L}$ 。导热系数采用德国 Netzsch 公司的 LFA 467 HT HyperFlash 导热系数测量仪, 激光闪射法室温测试, 样品直径为 25.4 mm, 厚度为 2 mm。材料密度采用东莞市宏拓仪器有限公司 DahoMeter DH-300X 固液两用比重计, 乙醇为分散剂, 阿基米德法测试。BN/EP 及 BN-Sn NPs/EP 复合材料电阻率、介电强度和介质损耗分别按 GB/T 1410—2006^[18]、GB/T 1408.1—2016^[19] 和 GB/T 1409—2006^[20] 测定, 样品直径为 80 mm, 厚度为 1 mm。

2 结果与讨论

图 2 为 BN 和 BN-Sn NPs 粉体的 XRD 图谱。可知, 在 $2\theta\approx27^{\circ}$ 、 42° 、 55° 和 76° 处的峰分别对应 BN 的 (002)、(100)、(004) 和 (110) 晶面^[21]。与 BN 相比, BN-Sn NPs 在 31° 、 32° 、 44° 和 45° 左右出现了新的衍射峰, 与 JCPDS 卡片中 04-0673Sn 的特

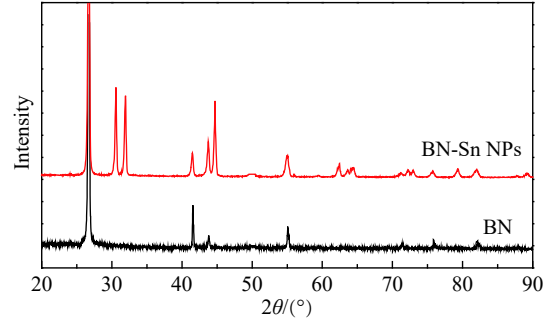


图 2 BN 和 BN-Sn NPs 的 XRD 图谱

Fig. 2 XRD patterns of BN and BN-Sn NPs

征峰完全相符, 分别对应 Sn 的 (200)、(101)、(220) 和 (211) 晶面。

图 3 为 BN 和 BN-Sn NPs 粉体的 XPS 全谱及 Sn3d 高分辨率窄谱。可知, 190.8 eV 和 398.4 eV 处分别为 B1s 和 N1s 的峰, 与原 BN 相比, BN-Sn NPs 在 484.9 eV 和 493.3 eV 处分别检测出明显的 Sn3d₅ 和 Sn3d₃ 峰^[17]。由 XPS 计算得到 BN 和 BN-Sn NPs 的元素组成如表 1 所示。可知, BN 中不含 Sn 元素, BN-Sn NPs 的 Sn 含量为 7.28wt%。

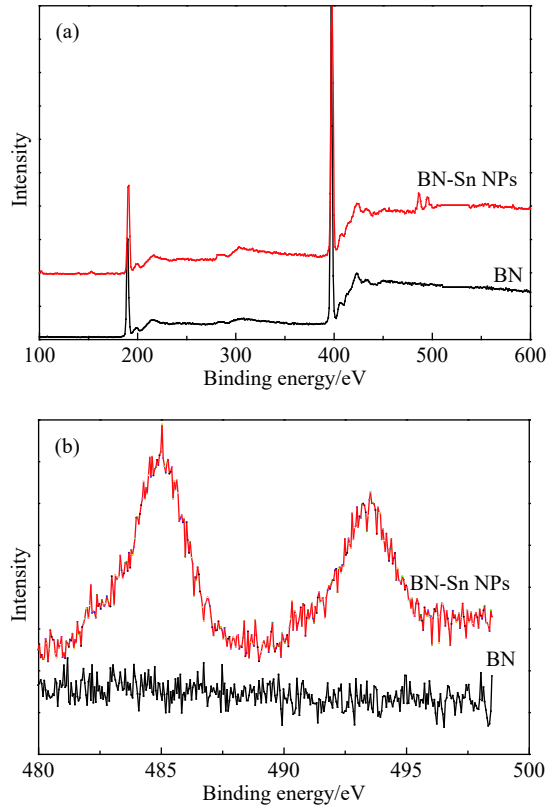


图 3 BN 和 BN-Sn NPs 的 XPS 全谱 (a) 及 Sn3d 高分辨率窄谱 (b)

Fig. 3 XPS survey spectra(a) and high resolution spectra of Sn3d region(b) of BN and BN-Sn NPs

图 4 为 BN 和 BN-Sn NPs 粉体的 SEM 图像。可知, BN 微米片表面较平整, 片径在 $4\text{ }\mu\text{m}$ 左右,

表 1 BN 和 BN-Sn NPs 的元素组成

Table 1 Element compositions of BN and BN-Sn NPs			
	wt%		
Sample	B	N	Sn
BN	43.09	55.67	0
BN-Sn NPs	39.91	51.55	7.28

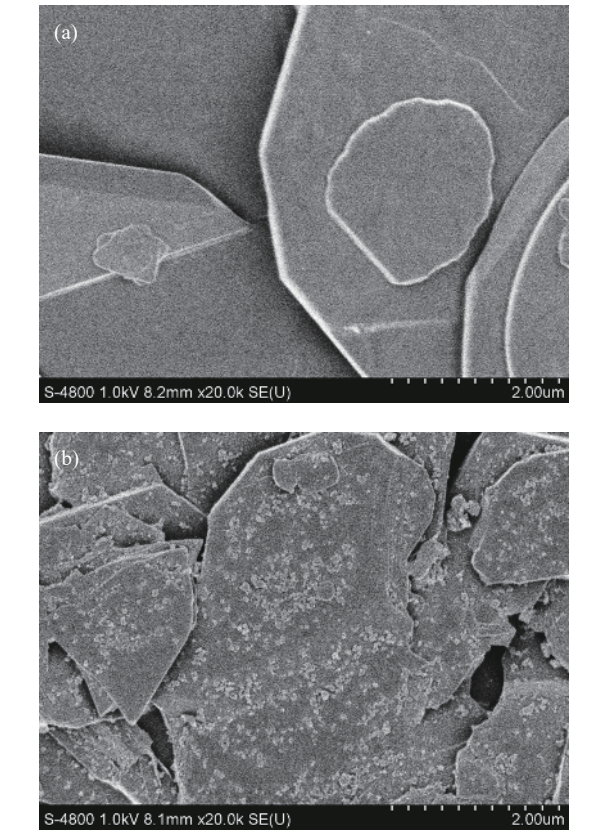


图 4 BN(a) 和 BN-Sn NPs(b) 的 SEM 图像

Fig. 4 SEM images of BN (a) and BN-Sn NPs (b)

厚度在几百纳米左右；BN-Sn NPs 表面纳米 Sn 粒径在 10~30 nm 范围内，呈互不相连的离散分布。

图 5 为 BN 和 BN-Sn NPs 粉体的 DSC 曲线。可知，BN-Sn NPs 在 166.5~195.3℃ 范围内出现的峰为纳米 Sn 的熔融吸收峰，比块状 Sn 的熔点 (231.9℃) 下降了 65.4~36.6℃，这是由于金属颗粒达到纳米尺度时，其熔点也随着粒子尺寸的减小而降低^[22-23]。

表 2 为 BN 和 BN-Sn NPs 粉体及其压片的主要性能对比。可知，由于 Sn 密度 (7.28 g·cm⁻³) 大于 BN 密度 (2.27 g·cm⁻³)，因此 BN-Sn NPs 粉体密度也大于 BN 粉体密度。与 BN 粉体及其压片相比，BN-Sn NPs 粉体的 Zeta 电位增加，EP 滴在 BN-Sn NPs 压片表面的接触角减小，这是由于 Sn 容易失

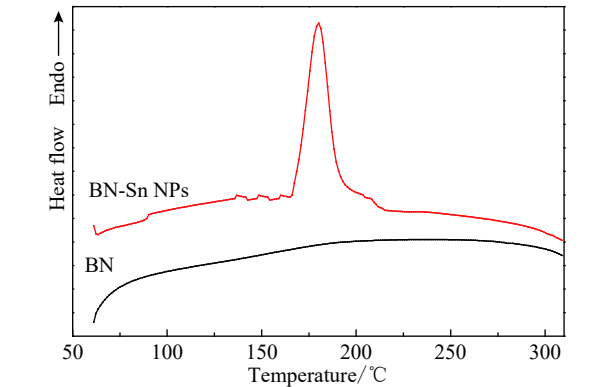


图 5 BN 和 BN-Sn NPs 的 DSC 曲线

Fig. 5 DSC curves of BN and BN-Sn NPs

表 2 BN 和 BN-Sn NPs 粉体及其压片性能对比

Table 2 Property comparison of BN and BN-Sn NPs powder and pressed sheet

Sample	BN	BN-Sn NPs
Density of powder/(g·cm ⁻³)	2.27±0.03	2.39±0.03
Zeta potential of powder/mV	-5.9±0.22	1.5±0.13
Epoxy drop contact angle on pressed sheet/(°)	95.1±3.60	68.7±3.90
Thermal conductivity of pressed sheet/(W(m·K) ⁻¹)	162±2.96	185±3.65

去电子而呈正电性，可与 EP 产生静电作用。BN-Sn NPs 压片的导热系数大于 BN 压片，这是由于在 180℃ 压制过程中，BN-Sn NPs 表面纳米 Sn 发生熔融烧结而相互桥联在一起，降低了接触热阻。

图 6 为填料体积分数 $V_f=20\text{vol}\%$ 的 BN/EP 及 BN-Sn NPs/EP 复合材料的 SEM 图像。可知，由于固化温度在 BN-Sn NPs 表面纳米 Sn 的熔融温度范围内，BN-Sn NP/EP 复合材料中填料表面纳米 Sn 颗粒消失。与 BN 相比，BN-Sn NPs 与树脂基体的分界线较为模糊，表明体系相容性及界面性能改善。这可能是金属 Sn 与 EP 基团间存在静电引力作用的结果。

图 7 为填料体积含量对 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料导热系数的影响。可知，在填料体积含量相等的情况下，BN-Sn NPs/EP 复合材料的导热系数大于 BN/EP 复合材料。当填料体积含量为 30vol% 时，BN-Sn NP/EP 复合材料的导热系数达 1.61 W(m·K)⁻¹，比 BN/EP 复合材料的导热系数 (1.08 W(m·K)⁻¹) 提高了近 50%。

Foygel 等和 Wang 等^[24-25] 采用 Monte Carlo 法模拟填料在树脂基体中的随机分布及产生逾渗导热行为的过程，提出填充型聚合物基复合体系的

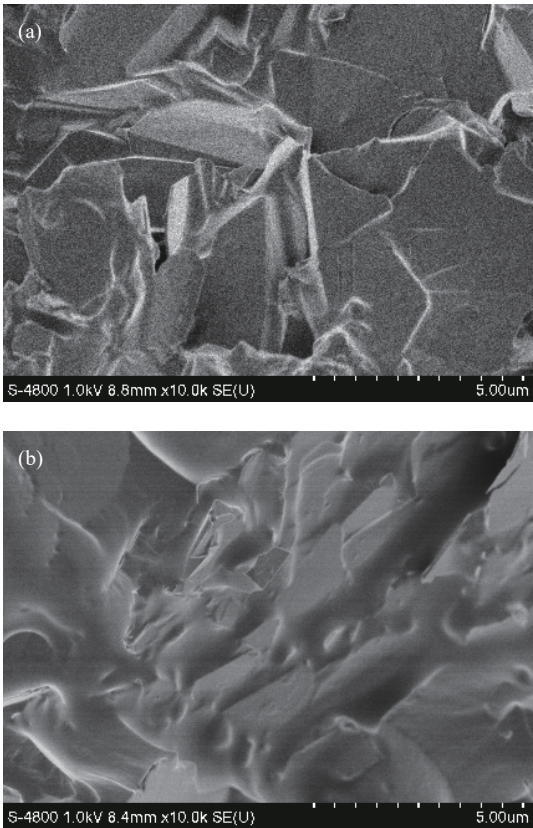


图 6 填料体积分数为 20vol% 的 BN/环氧树脂 (EP)(a) 和 BN-Sn NPs/EP(b) 复合材料的 SEM 图像

Fig. 6 SEM images of BN/epoxy(EP) resin(a) and BN-Sn NPs/EP(b) composites with fillers volume fraction of 20vol%

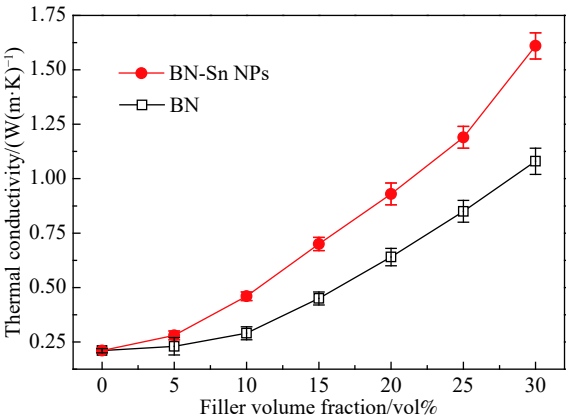


图 7 填料体积含量对 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料导热系数的影响

Fig. 7 Effects of filler volume fraction on thermal conductivity of BN/EP and BN-Sn NPs/EP composites

导热系数理论计算公式如下：

$$\lambda=\lambda_0(V_f-V_c)^t \tag{1}$$

式中： λ 为复合体系的导热系数； λ_0 为指前因子，该值与接触填料或填充网络的有效热导率有关；

V_f 为填料体积含量； V_c 为填料产生逾渗导热行为的临界体积含量； t 为热导率指数，该值取决于填料的径厚比(α)。根据生产商提供的资料及前述 SEM 图像，本文所用 BN 的 $\alpha\approx13.3$ 。按 Foygel 等和 Wang 等^[24-25]的研究结果，对于该类 $\alpha>>1$ 的填料， $V_c\approx0.60/\alpha\approx0.045$ ， $t\approx1.8$ 。

图 8 为 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料热导率的 Foygel 模拟结果。可知，采用式 (1) 模拟 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料的热导率结果与实验结果相差较大。这是由于式 (1) 只适合于填料之间开始发生接触，即 $V_f>V_c$ 时的情况，而当 $V_f\leq V_c$ 时，复合体系的热导率为 0。考虑到 $V_f\leq V_c$ 时复合体系的热导率，提出修正公式如下：

$$\lambda=\lambda_0(V_f-V_c)^t+\lambda_c \tag{2}$$

式中， λ_c 为填料在临界体积含量时复合体系的热导系数。根据实测结果，BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料的 λ_c 分别为 $0.22\text{ W}(\text{m}\cdot\text{K})^{-1}$ 和 $0.26\text{ W}(\text{m}\cdot\text{K})^{-1}$ 。

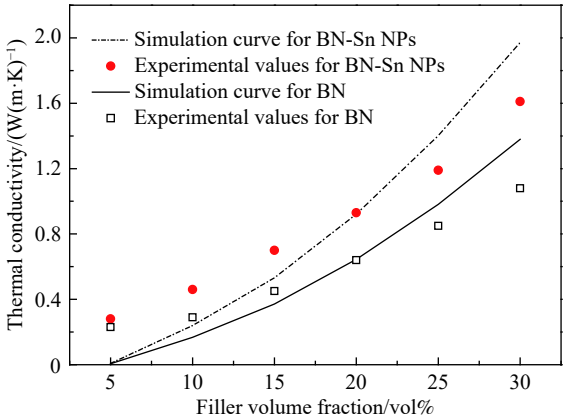


图 8 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料热导率的 Foygel 模拟结果
Fig. 8 Foygel simulation results of thermal conductivities of BN/EP and BN-Sn NPs/EP composites

图 9 为 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料热导率的修正型 Foygel 公式模拟结果。可知，采用式 (2) 模拟 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料的热导率结果与实测结果比较接近。BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料的 λ_0 值分别为 $10.9\text{ W}(\text{m}\cdot\text{K})^{-1}$ 和 $18.1\text{ W}(\text{m}\cdot\text{K})^{-1}$ 。填料间的接触热阻 R_c 为

$$R_c=\left(\lambda_0LV_c^t\right)^{-1} \tag{3}$$

式中， L 为填料片径。按图 9 修正型 Foygel 公式的 λ_0 值模拟结果，可计算出 BN-Sn NPs 在 EP 基体中的接触热阻 $R_c=3.7\times10^6\text{ K}\cdot\text{W}^{-1}$ ，低于 BN 的接触热阻 ($R_c=6.1\times10^6\text{ K}\cdot\text{W}^{-1}$)。这是由于在固化过程

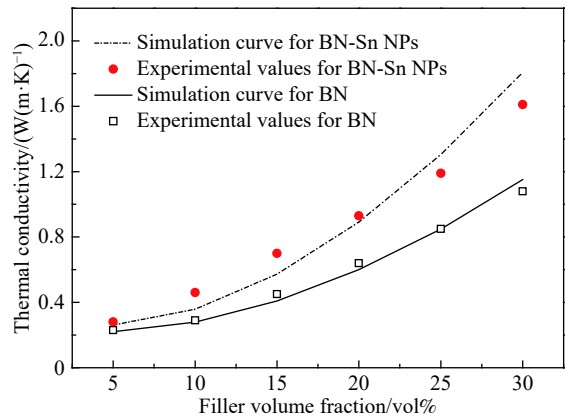


图9 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料热导率的修正型 Foygel 公式模拟结果

Fig. 9 Modified Foygel simulation results of thermal conductivities of BN/EP and BN-Sn NPs/EP composites

中，BN-Sn NPs 表面纳米 Sn 发生熔融烧结，有利于填料之间的相互紧密搭接，降低接触热阻。

图 10 为填料体积含量对 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料电性能的影响。可知，BN/EP 复合材料的介质损耗角正切 ($\tan\delta$)、介电强度和体积电阻率分别为 0.005、40.5 kV·mm⁻¹ 和 10¹⁵ Ω·m 左右，几乎不受填料含量的影响。随填料体积含量的增加，BN-Sn NPs/EP 复合材料的介质损耗增大，介电强度和体积电阻率减小。这可能是由于 BN-Sn NPs/EP 复合材料中少量金属导体 Sn 导致漏导损耗和极化损耗的原因。当填料体积含量为 30vol% 时，BN-Sn NPs/EP 材料的体积电阻率在 10¹³ Ω·m 左右，仍然具有良好的电绝缘性能。

3 结论

(1) 采用液相还原法，制备了 BN 表面沉积纳米 Sn 粒子 (BN-Sn NPs) 杂化材料。BN-Sn NPs 表面纳米 Sn 粒径和熔点分别为 10~30 nm 和 166.5~195.3℃。BN 表面沉积纳米 Sn 提高了粉体的 Zeta 电位及压片的导热系数，降低了环氧树脂 (EP) 滴在压片表面的接触角。

(2) 在 BN-Sn NPs/EP 复合材料固化过程中，BN-Sn NPs 表面纳米 Sn 熔融烧结，有利于填料相互桥联在一起，降低接触热阻，并改善界面性能，从而提高复合材料导热系数。当填料体积含量为 30vol% 时，BN-Sn NPs/EP 复合材料的导热系数达 1.61 W(m·K)⁻¹，比未改性 BN/EP 复合材料的导热系数 (1.08 W(m·K)⁻¹) 提高了近 50%。

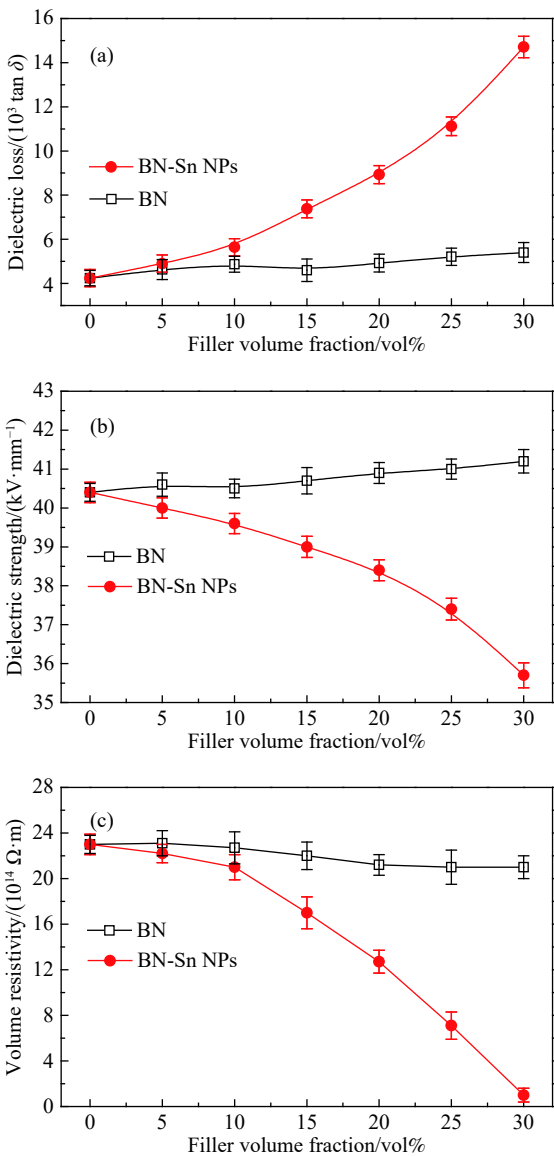


图 10 填料体积含量对 BN/EP 和 BN-Sn NPs/EP 复合材料介质损耗、介电强度和体积电阻率的影响

Fig. 10 Effects of filler volume fraction on dielectric loss, dielectric strength and volume resistivity of BN/EP and BN-Sn NPs/EP composites

(3) Monte Carlo 法模拟结果表明，BN 和 BN-Sn NPs 在 EP 基体中的接触热阻 R_c 分别为 $6.1 \times 10^6 \text{ K} \cdot \text{W}^{-1}$ 和 $3.7 \times 10^6 \text{ K} \cdot \text{W}^{-1}$ 。

(4) 与未改性 BN/EP 复合材料相比，BN-Sn NPs/EP 复合材料中由于少量金属 Sn 的存在，导致复合材料的介质损耗增大，介电强度及体积电阻率减小。当填料体积含量为 30vol% 时，BN-Sn NPs/EP 复合材料的体积电阻率在 10¹³ Ω·m 左右，低于 BN/EP 复合材料的体积电阻率 (10¹⁵ Ω·m)，但仍然具有良好的电绝缘性能。

参考文献:

- [1] LI Q, CHEN L, GADINSKI M R, et al. Flexible high-temperature dielectric materials from polymer nanocomposites[J]. *Nature*, 2015, 523(7562): 576-579.
- [2] HUANG X Y, ZHI C Y, JIANG P K, et al. Polyhedral oligosilsesquioxane-modified boron nitride nanotube based epoxy nanocomposites: An ideal dielectric material with high thermal conductivity[J]. *Advanced Functional Materials*, 2013, 23(14): 1824-1831.
- [3] NAGAOKA S, JODAI T, KAMEYAMA Y, et al. Cellulose/boron nitride core-shell microbeads providing high thermal conductivity for thermally conductive composite sheets[J]. *RSC Advances*, 2016, 6(39): 33036-33042.
- [4] GARIMELLA S V, FLEISCHER A S, MURTHY J Y, et al. Thermal challenges in next-generation electronic systems[J]. *IEEE Transactions on Components and Packaging Technologies*, 2008, 31(4): 801-815.
- [5] GEORGE S, ANJANA P S, SEBASTIAN M T, et al. Dielectric, mechanical, and thermal properties of low-permittivity polymer-ceramic composites for microelectronic applications[J]. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 2010, 7(4): 461-474.
- [6] CHEN J, HUANG X Y, SUN B, et al. Highly thermally conductive yet electrically insulating polymer/boron nitride nanosheets nanocomposite films for improved thermal management capability[J]. *ACS Nano*, 2019, 13(1): 337-345.
- [7] 虞锦鸿. 高导热聚合物基复合材料的制备与性能研究[D]. 上海: 上海交通大学, 2012.
- YU Jinhong. Study on preparation and properties of polymer-based composites with high thermal conductivities[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2012(in Chinese).
- [8] 周文英, 丁小卫. 导热高分子材料[M]. 北京: 国防工业出版社, 2014.
- ZHOU Wenying, DING Xiaowei. Thermal conductive polymer materials[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2014(in Chinese).
- [9] SONG S H, KATAGI H, TAKEZAWA Y. Study on high thermal conductivity of mesogenic epoxy resin with spherulite structure[J]. *Polymer*, 2012, 53(20): 4489-4492.
- [10] SHRESTHA R, LI P F, CHATTERJEE B, et al. Crystalline polymer nanofibers with ultra-high strength and thermal conductivity[J]. *Nature Communications*, 2018, 9: 1664.
- [11] 吴宇明, 虞锦洪, 曹勇, 等. 高导热低填量聚合物基复合材料研究进展[J]. 复合材料学报, 2018, 35(4): 760-766.
- WU Yuming, YU Jinhong, CAO Yong, et al. Review of polymer-based composites with high thermal conductivity and low filler loading[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2018, 35(4): 760-766(in Chinese).
- [12] 党婧, 刘婷婷. SiC颗粒-SiC晶须混杂填料/双马来酞亚胺树脂导热复合材料的制备与性能[J]. 复合材料学报, 2017, 34(2): 263-269.
- DANG Jing, LIU Tingting. Fabrication and properties of SiC_p-SiC_w hybrid fillers/bismaleimide thermal conductivity composites[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2017, 34(2): 263-269(in Chinese).
- [13] 陈金, 王春锋, 王永亮, 等. 纳米Al₂O₃分布对Al₂O₃/PE-EVA复合材料导热性能与力学性能的影响[J]. 复合材料学报, 2015, 32(5): 1286-1293.
- CHEN Jin, WANG Chunfeng, WANG Yongliang, et al. Effects of nano Al₂O₃ distribution on thermal conductivity and mechanical property of Al₂O₃/PE-EVA composites[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2015, 32(5): 1286-1293(in Chinese).
- [14] 汪蔚, 曹万荣, 陈婷婷. BN表面改性对BN/环氧树脂复合材料导热性能的影响[J]. 复合材料学报, 2018, 35(2): 275-281.
- WANG Wei, CAO Wangrong, CHEN Tingting. Effects of BN surface modification on thermal conductivity of BN/epoxy composites[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2018, 35(2): 275-281(in Chinese).
- [15] ISARN I, MASSAGUES L, RAMIS X, et al. New BN-epoxy composites obtained by thermal latent cationic curing with enhanced thermal conductivity[J]. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2017, 103: 35-47.
- [16] JIN W, ZHANG W, GAO Y, et al. Surface functionalization of hexagonal boron nitride and its effect on the structure and performance of composites[J]. *Applied Surface Science*, 2013, 270(4): 561-571.
- [17] CHEE S S, LEE J H. Synthesis of sub-10-nm Sn nanoparticles from Sn(II) 2-ethylhexanoate by a modified polyol process and preparation of Ag-Sn film by melting of the Sn nanoparticles[J]. *Thin Solid Films*, 2014, 562: 211-217.
- [18] 中国国家标准化管理委员会. 固体绝缘材料体积电阻率和表面电阻率试验方法: GB/T 1410—2006[S]. 北京: 中国标准出版社, 2006.
- Standardization Administration of the People's Republic of China. Methods of test for volume resistivity and surface resistivity of solid electrical insulating materials: GB/T 1410—2006[S]. Beijing: China Standards Press, 2006(Chinese).
- [19] 中国国家标准化管理委员会. 绝缘材料电气强度试验方法 第1部分: 工频下试验: GB/T 1408.1—2016[S]. 北京: 中国标准出版社, 2016.
- Standardization Administration of the People's Republic of China. Insulating materials: Test methods for electric strength Part 1: Test at power frequencies: GB/T 1408.1—2016[S]. Beijing: China Standards Press, 2016(Chinese).

[20] 中国国家标准化管理委员会. 测量电气绝缘材料在工频、音频、高频(包括米波波长在内)下电容量和介质损耗因数的推荐方法: GB/T 1409—2006[S]. 北京: 中国标准出版社, 2006.

Standardization Administration of the People’s Republic of China. Recommended methods for the determination of the permittivity and dielectric dissipation factor of electrical insulating materials at power, audio and radio frequencies including meter wavelengths: GB/T 1409 —2006[S]. Beijing: China Standards Press, 2006(Chinese).

[21] BERNARD S, CHASSAGNEUX F, BERTHET M P, et al. Structural and mechanical properties of a high-performance BN fibre[J]. [Journal of the European Ceramic Society](#), 2002, 22(12): 2047-2059.

[22] JIANG H, MOON K, DONG H, et al. Size-dependent melting properties of tin nanoparticles[J]. [Chemical Physics Letters](#), 2006, 429(4): 492-496.

[23] CHEE S S, LEE J H. Reduction synthesis of tin nanoparticles using various precursors and melting behavior[J]. [Electronic Materials Letters](#), 2012, 8(6): 587-593.

[24] FOYGEL M, MORRIS R D, ANEZ D, et al. Theoretical and computational studies of carbon nanotube composites and suspensions: Electrical and thermal conductivity[J]. [Physical Review B](#), 2005, 71: 104201.

[25] WANG F F, ZENG X L, YAO Y M. Silver nanoparticle-deposited boron nitride nanosheets as fillers for polymeric composites with high thermal conductivity[J]. [Scientific Reports](#), 2016, 6: 19394.