

# 高导热环氧树脂复合绝缘材料的制备与性能研究

王立国<sup>1</sup>, 高巍<sup>1</sup>, 张昕<sup>1</sup>, 徐善军<sup>2,3</sup>, 任书楠<sup>2,3</sup>, 郭俊龙<sup>2,3</sup>

(1. 国网天津市电力公司, 天津 300010; 2. 北京国电富通科技发展有限公司, 北京 100070;

3. 国网电力科学研究院有限公司, 江苏 南京 211106)

**摘要:**环氧树脂等高分子聚合物材料热导率低, 长期使用, 存在热导致的故障和绝缘失效等隐患。通过向环氧树脂中填充具有高导热性和高绝缘性的微米氮化硼和纳米氧化铝填料制备高导热复合绝缘材料, 研究填料填充量及配比对复合材料导热性能和绝缘性能的影响。结果表明: 当总填充量为30%, 微米h-BN与纳米Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的质量比为3:1时, 复合材料的热导率、击穿时间和复介电常数虚部 $\epsilon''$ 分别为1.182 0 W/(m·K)、31.9 s和0.034, 比环氧树脂分别提升了697%、21.4%和406%, 且复合材料在高频高压电场下具有良好的耐受性能。

**关键词:**环氧树脂; 微米氮化硼; 纳米氧化铝; 高导热; 高绝缘

中图分类号: TM215.1 文献标志码: A 文章编号: 1009-9239(2021)02-0020-07

DOI: 10.16790/j.cnki.1009-9239.im.2021.02.004

## Preparation and Performance of High Thermal Conductive Epoxy Resin Composite Insulating Materials

WANG Ligu<sup>1</sup>, GAO Wei<sup>1</sup>, ZHANG Xin<sup>1</sup>, XU Shanjun<sup>2,3</sup>, REN Shunan<sup>2,3</sup>, GUO Junlong<sup>2,3</sup>

(1. State Grid Tianjin Electric Power Company, Tianjin 300010, China; 2. Beijing Guodian Futong

Science and Technology Development Co., Ltd., Beijing 100070, China; 3. State Grid Electric Power

Research Institute, Nanjing 211106, China)

**Abstract:** Polymer materials such as epoxy resin have hidden dangers of thermal failure and insulation failure during long-term service since its low thermal conductivity. In this study, a high thermal conductive composite insulating material was prepared by filling micron boron nitride and nano alumina with high thermal conductivity and high insulation properties to epoxy resin, and the effect of filling amount and ratio of fillers on the thermal conductivity and insulation properties of composite materials were studied. The results show that when the total filling content is 30% and the mass ratio of micron boron nitride to nano alumina is 3:1, the thermal conductivity, breakdown time, and imaginary part of complex permittivity ( $\epsilon''$ ) of the composite materials is 1.182 0 W/(m·K), 31.9 s, and 0.034, respectively, which is improved by 697%, 21.7%, and 406% compared with epoxy resin, respectively. The composite material has good resistance performance under high frequency and high electric field.

**Key words:** epoxy resin; micron boron nitride; nano alumina; high thermal conductivity; high insulation

## 0 引言

在电气绝缘领域内, 高分子聚合物材料是常见和重要的固体绝缘材料, 这类材料加工性能优良、

绝缘性能优异、耐化学腐蚀能力强, 但是热导率低, 散热能力差, 在长期使用, 存在热导致的故障和绝缘失效等隐患<sup>[1-2]</sup>。随着电气工程领域电压等级的提升和电力电子技术对频率的提升, 以及电子技术领域的高集成化和高频化等趋势, 特别是带电作业装备的绝缘要求提升, 对绝缘材料的导热能力和耐热性提出了更高的要求<sup>[3-4]</sup>。

目前, 高导热聚合物材料的研究主要分为本征型和填充型两大方向。本征型聚合物在生产过程

收稿日期: 2020-09-08 修回日期: 2020-10-09

基金项目: 国家电网有限公司科技项目(SGTJBH00YJJS1902138)

作者简介: 王立国(1988-), 男(满族), 辽宁锦州人, 工程师, 主要从事高压线路带电检修、带电作业工器具绝缘的研究; 任书楠(1988-), 男(汉族), 河北衡水人, 高级工程师, 博士, 主要从事配网带电作业装备及工具、高压绝缘材料的研究。

中,可以通过机械力、电场力、磁场力等作用使小分子单体的有序性提高,从而提高材料的结晶度,减少声子在传输过程中的散射。CAO B Y等<sup>[5]</sup>提出用一种改进的多孔模板润湿技术制备导热型聚合物纳米线阵列,制备的高密度聚乙烯纳米线阵列的热导率比块状形态的热导率高约两个数量级;Y TAKEZAWA等<sup>[6]</sup>研究发现当环氧树脂基体中液晶数量增加时材料的热导率提升;SHEN S等<sup>[7]</sup>利用超拉伸工艺制备出直径为50~500 nm,长度可达几十毫米的聚乙烯纳米纤维,使聚合物链实现了向“理想”的单晶纤维结构调整,从而大幅提高了热导率。但是本征型聚合物的热导率提升幅度有限,且工艺复杂,成本昂贵,实现难度大,因此发展非常缓慢。向聚合物填充高热导率的填料,当填料互相接触形成导热通路时,制备的填充型聚合物可以显著提高热传导能力,且制备工艺简单,成本低廉,易于实际规模化生产。陆鸱<sup>[8]</sup>以微米金刚石粉为填料、环氧树脂为基体制备聚合物复合材料,发现填充75.4%微米金刚石粉的复合材料热导率最高;YU A P等<sup>[9]</sup>发现4层石墨烯作为导热填料添加到环氧树脂中,复合材料的导热性能最好;张晓辉等<sup>[10]</sup>研究了SiC的填充对于环氧树脂的影响;ZHOU W Y等<sup>[11]</sup>以Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>为导热填料,研究了颗粒大小、浓度、分散性等对复合材料热导率和相关介电性能的影响;还有众多学者研究了金属粉末材料,如银<sup>[12]</sup>、铜<sup>[13]</sup>、铝<sup>[14-15]</sup>等对聚合物材料导热性能的影响。结果表明,单一材料的填充,能够提高聚合物的热导率,但也可能会引起电绝缘性能、力学性能的劣化<sup>[16]</sup>。

本研究利用多巴胺修饰微米氮化硼,硅烷偶联剂修饰纳米氧化铝,将这两种填料混合使用填充到环氧树脂体系中,研究填充量、配比等参数对复合材料热导率的影响;通过介质损耗测试,分析材料在电场下损耗情况;利用高频电压电场下的击穿时间来表征材料的耐受性能。

## 1 试验

### 1.1 试验材料

双酚A型液体环氧树脂(DGEBA),美国瀚森公司;甲基四氢苯酐(MTHPA),濮阳惠成电子材料股份有限公司;N,N-二甲基苄胺(BDMA),上海阿拉丁生化科技股份有限公司;微米六方氮化硼(h-BN)直径约为10 μm,丹东日进科技有限公司;纳米氧化铝(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>),直径约为30 nm,宣城晶瑞新材料有限公

司;盐酸多巴胺、3-氨基丙基三乙氧基硅烷(硅烷偶联剂KH550)和三(羟甲基)氨基甲烷,阿法埃莎化学有限公司。

### 1.2 复合材料的制备

纳米Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>采用硅烷偶联剂KH550进行修饰:将20 g纳米Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>分散在190 mL乙醇和10 mL去离子水的混合溶液中,加入200 mg硅烷偶联剂KH550,超声15 min,然后在70℃下搅拌6 h,离心后在60℃下烘焙24 h,研磨备用。

h-BN采用多巴胺进行修饰:将182 mg三(羟甲基)氨基甲烷加入150 mL去离子水中,配置得到10 mmol/L(pH值约为8.5)的缓冲液,然后加入50 mL无水乙醇、10 g h-BN和400 mg盐酸多巴胺,用玻璃杯搅拌后置于超声仪中于175 W超声15 min,然后在室温下磁力搅拌6 h,将混合物高速离心,置于60℃的真空干燥箱中烘焙24 h,研磨备用。

环氧树脂复合材料的制备:在研钵中将处理后的h-BN和Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末磨细,将Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>和h-BN粉末加入到DGEBA、MTHPA、BDMA的混合物中(质量比为100:86:2),采用大功率机械搅拌机高速搅拌15~30 min,将混合均匀的混合物在60℃的真空箱中抽真空脱气30~50 min,然后倒在100℃的热压机模具孔洞中,热压30 min初步固化成型,取出在100℃的真空箱中预固化1.5 h,再升温到150℃后固化10 h,得到固化完全的复合材料样品。

### 1.3 材料测试

扫描电子显微镜测试:利用SU8000型扫描电子显微镜(日本Hitachi公司)对微米h-BN和纳米Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的表面形貌进行观察,加速电压为10 kV。

傅里叶变换红外光谱测试:利用Nexus670型红外光谱仪(美国Nicolet公司)对修饰前后h-BN、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的表面官能团进行表征,扫描范围为400~4 000 cm<sup>-1</sup>。

差示扫描量热分析:采用Q5000IR型热测试系统(美国德州仪器公司)对环氧树脂复合材料的玻璃化转变温度进行分析。

热导率测试:采用DRL-II型热流法导热仪(湘潭湘仪仪器有限公司)对环氧树脂复合材料的热导率进行表征,样品测试前,表面均匀涂抹导热硅脂,保证样品与测试电极的良好接触。

介电频谱测试:采用Concept 80型宽频介电谱仪(德国NovoControl公司)对环氧树脂复合材料的介电常数和介质损耗进行测试。

高频击穿特性测试:采用 HFHV20-1 型高频高压电源(中科院电工所)对环氧树脂复合材料在高频率、高场强交流电场下的击穿特性进行测试。

工频击穿特性测试:利用常规的工频击穿试验装置对环氧树脂复合材料的电气强度进行测试。

## 2 结果与讨论

本研究利用多巴胺修饰 h-BN, 硅烷偶联剂 KH550 修饰纳米  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 将这两种填料混合填充到环氧树脂体系中, 制备了不同填充量和不同比例的环氧树脂复合材料。为了在其性能测试和分析中便于区分, 将多巴胺修饰的微米氮化硼标记为 Bd, 将硅烷偶联剂 KH550 修饰的纳米  $\text{Al}_2\text{O}_3$  标记为 AK, 纯环氧树脂标记为 EP, EP/Bd/AK 复合材料标记为 BdAK $x$ - $y$ / $z$ , 其中  $x$  代表填料的总填充浓度百分比,  $y/z$  代表 Bd 与 AK 的比例。

### 2.1 表面形貌分析

图 1(a)、(b)分别为微米级的六方氮化硼(h-BN)和纳米级的 $\alpha$ 氧化铝( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )未修饰前的表面形貌。从图 1(a)和 1(b)可以看出, h-BN 为片状, 与一般的六方氮化硼形状相同, 平面尺寸约为  $10\ \mu\text{m}$ , 片层厚度约为  $30\sim 50\ \text{nm}$ ;  $\text{Al}_2\text{O}_3$  为球状, 直径约为  $30\ \text{nm}$ 。

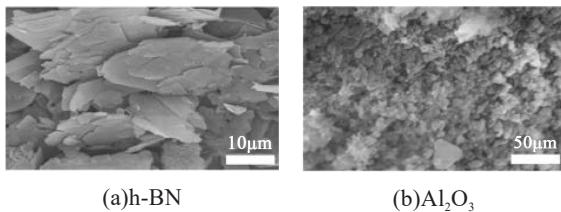


图 1 h-BN 和  $\text{Al}_2\text{O}_3$  扫描电镜图

Fig.1 SEM images of h-BN and  $\text{Al}_2\text{O}_3$

图 2(a)、(b)分别为 h-BN、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  表面改性前后的红外光谱图。从图 2(a)可以看出, 在  $1380\ \text{cm}^{-1}$  和  $800\ \text{cm}^{-1}$  处的吸收峰为 h-BN 中 B-N 的伸缩振动和弯曲振动; 改性后在  $3650\ \text{cm}^{-1}$  和  $3300\ \text{cm}^{-1}$  处出现了新的吸收峰, 对应的是 O-H 和 N-H 基团的振动。从图 2(b)可以看出, 在  $2965\ \text{cm}^{-1}$  和  $2880\ \text{cm}^{-1}$  处的吸收峰分别对应甲基( $-\text{CH}_3$ )的不对称和对称伸缩振动峰,  $1465$ 、 $1344$ 、 $1028\ \text{cm}^{-1}$  处的吸收峰分别对应  $-\text{CH}_2-$  的弯曲振动、 $-\text{CCH}$  的平面内弯曲振动、 $\text{C}-\text{C}$  伸缩振动峰, 表明硅烷偶联剂 KH550 在  $\text{Al}_2\text{O}_3$  表面成功发生水解并与  $\text{Al}_2\text{O}_3$  结合, 改变了  $\text{Al}_2\text{O}_3$  表面的理化特性。

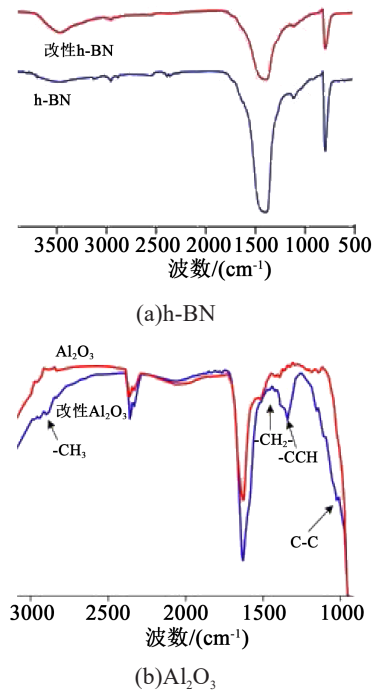


图 2 h-BN 和  $\text{Al}_2\text{O}_3$  表面改性前后的红外光谱图  
Fig.2 FTIR spectra of h-BN and  $\text{Al}_2\text{O}_3$  before and after surface modification

### 2.2 玻璃化转变温度( $T_g$ )

不同填充量的复合材料差示扫描量热曲线如图 3(a)所示, EP 的  $T_g$  是  $133^\circ\text{C}$ 。从图 3(a)可以看出, 质量分数为 10% 和 20% 的复合材料  $T_g$  降低, 但没有表现出显著差异, 当填充量达到 30% 时, 复合材料的  $T_g$  显著降低, 为  $127^\circ\text{C}$ 。虽然对填料进行了表面改性, 但是其与基体环氧树脂还是不可避免地存在界面相容性的问题。填料颗粒会发生团聚, 特别是纳米尺寸的  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 在复合材料中会引入极其微小的孔和缺陷, 影响局部的交联密度。当填充量较低时, 对交联密度影响不大, 材料的  $T_g$  基本不变或略有下降; 当填充量较高时, 材料内部的缺陷和微孔增多, 复合材料的交联密度和固化程度受到较大的影响, 从而使得  $T_g$  出现明显的降低。

图 3(b)为不同 Bd/AK 比例的复合材料的差示扫描量热曲线(DSC 曲线), 填充量均为 30%。可以看出复合材料 BdAK30-1/3 的  $T_g$  最低, 约为  $125^\circ\text{C}$ , 这是由于复合材料所填充的 AK 的量最多。众所周知, 纳米颗粒具有极大的比表面积, 并且很容易出现团聚, 虽然表面修饰后与基体的相容性大幅改善, 但是在填充量大时不可避免地引入较多的微孔和缺陷, 因此材料整体上的固化程度和交联度

较低,  $T_g$ 降低。随着Bd/AK比例的增大, 填料的比表面积大幅减小, 微孔和缺陷也减小, 交联度和固化程度上升,  $T_g$ 上升。

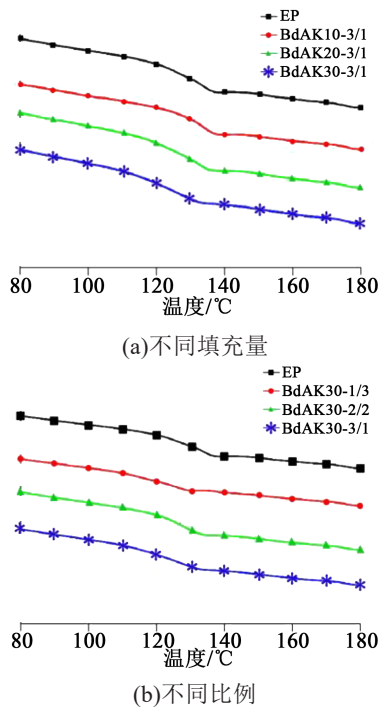


图3 复合材料的DSC曲线

Fig.3 DSC curves of composites

### 2.3 热导率测试

热导率是复合材料的重要指标, 且与高频击穿性能密切相关。环氧树脂复合材料的热导率及其热导率增量的百分数如图4所示。从图4(a)可以看出, 相比于EP的低热导率(0.148 3 W/(m·K)), 复合材料的热导率表现出明显的提升, 在相同的Bd/AK比例下, 复合材料的热导率随着填充量的增加而增大, 并且增大的速率也在提高, 但不是线性增加。在相同的质量分数下, Bd/AK比例越大, 复合材料的热导率越高, 热导率的增速也越快。只填充AK的复合材料热导率变化较小, 填充量为30%时, 相比EP热导率仅增加151.3%。而填充量为30%时, BdAK30-1/3、BdAK30-2/2、BdAK30-3/1的热导率分别为0.542 2、0.821 8、1.182 0 W/(m·K), 相比EP热导率分别增加了265.6%、454.1%、697.0%, 如图4(b)所示。

### 2.4 介质损耗

电介质的复介电常数为式(1)所示。

$$\epsilon^* = \epsilon' - j\epsilon'' \quad (1)$$

式(1)中: 实部  $\epsilon'$  为介电常数, 表示材料在电场下的

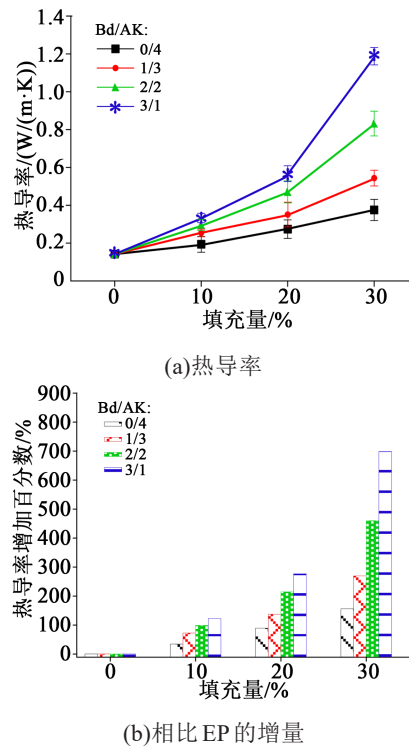


图4 复合材料的热导率

Fig.4 Thermal conductivity of composites

极化能力; 虚部  $\epsilon''$  表示极化过程中的能量损耗, 称为介质损耗, 为介电常数实部与介质损耗因数  $\tan\delta$  的乘积, 如式(2)所示。

$$\epsilon'' = \epsilon' \tan \delta \quad (2)$$

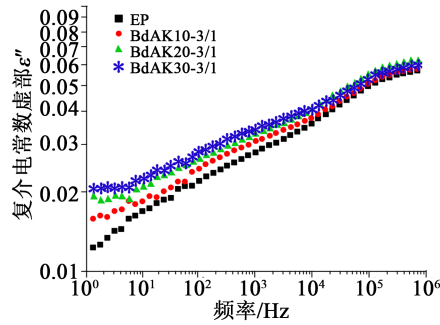
复介电常数与频率和温度有关, 并且对材料的变化比较敏感, 比如老化、受潮和添加填料。具有各种极化形式以及电导的电介质的  $\epsilon'$  和  $\epsilon''$  与频率的关系如式(3)和式(4)所示。

$$\epsilon' = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (3)$$

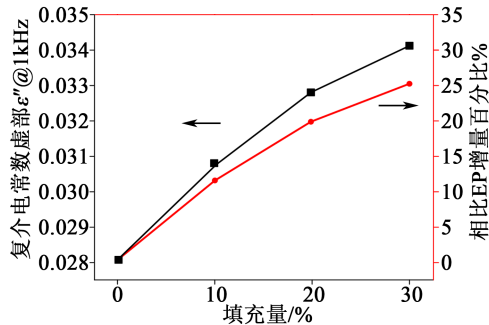
$$\epsilon'' = \frac{\gamma}{\omega\epsilon_0} + \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (4)$$

式(3)~(4)中:  $\epsilon_\infty$  为光频介电常数;  $\epsilon_s$  为静态介电常数;  $\omega$  为角频率;  $\tau$  为松弛时间;  $\gamma$  为电导率;  $\epsilon_0$  为真空介电常数。

图5(a)为环氧树脂复合材料的复介电常数虚部  $\epsilon''$  与填料质量分数的关系。从图5(a)可以看出, EP和复合材料的介质损耗数量级均为  $10^{-2}$ , 与广泛应用的环氧树脂的介质损耗数量级一致。但复合材料的复介电常数虚部  $\epsilon''$  均高于EP, 说明填充颗粒的增加使得材料的能量损耗增大, 且填料质量分数越高, 损耗越大。图5(b)为1 kHz时复合材料BdAKx-



(a)复介电常数的虚部



(b)1 kHz时复介电常数虚部

图5 不同填充量的复合材料的复介电常数虚部和1 kHz时的复介电常数虚部

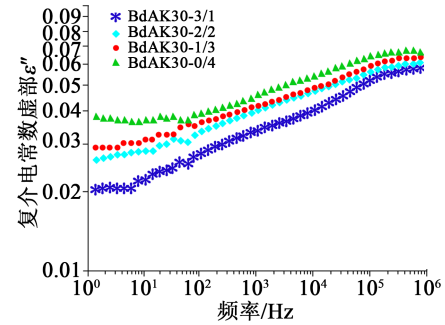
Fig.5 The  $\epsilon''$  of composites with different filling content and  $\epsilon''$  at 1 kHz

3/1的复介电常数虚部 $\epsilon''$ 与填料质量分数的关系。从图5(b)可以看出,在1 kHz时,EP的 $\epsilon''$ 是0.028,复合材料BdAK10-3/1、BdAK20-3/1和BdAK30-3/1的 $\epsilon''$ 分别为0.031、0.033和0.034,相比于EP分别增加了10.7%、17.8%和21.4%。

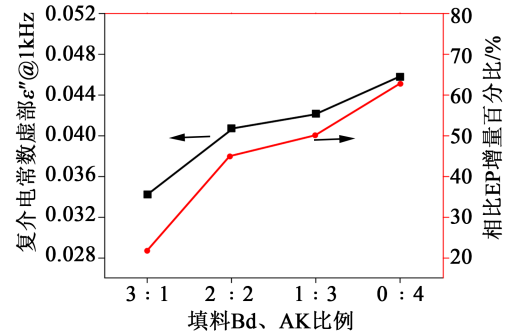
图6(a)为环氧树脂复合材料的复介电常数虚部 $\epsilon''$ 与填料Bd、AK比例的关系,其中填料质量分数均为30%。从图6(a)可以看出混合填料中AK含量越多,损耗越大。图6(b)为1 kHz时复合材料的复介电常数虚部与填料Bd、AK比例的关系,可以看出当Bd、AK比例分别为3:1、2:2、1:3和0:4时,复介电常数的虚部 $\epsilon''$ 分别为0.034、0.041、0.042和0.046,这是因为纳米填料增加,漏导电流增大,产生的损耗增加。同时,纳米填料增加导致界面区域的面积迅速增大,空间电荷极化损耗和界面极化损耗亦增大。因此混合填料中AK含量越多,复合材料的复介电常数虚部 $\epsilon''$ 越大。

## 2.5 高频击穿特性

为表征制备的高导热环氧树脂复合绝缘材料在高频下的耐受性,考虑到热击穿是一个热量产生、散发、积累、破坏的过程,其击穿时间比电击穿



(a)复介电常数的虚部



(b)1 kHz时的复介电常数虚部

图6 不同填料比例的复合材料的复介电常数虚部和1 kHz时的复介电常数虚部

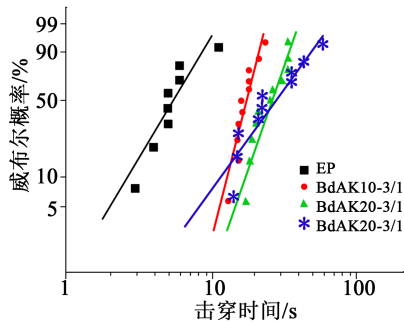
Fig.6 The  $\epsilon''$  of composites with different proportions of fillers and  $\epsilon''$  at 1 kHz

的时间更久,所以选择一个较高的频率,通过多次试验选择一个适当的高压,然后固定电源的频率44 kHz和电压15 kV,选用厚度均为0.3 mm的样品,记录从加压到击穿的时间,以击穿时间的长短来表征材料在高频电压电场下的耐受性能。

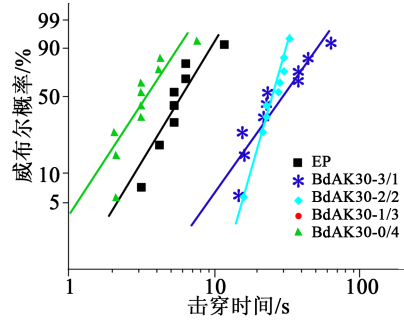
图7(a)为填料Bd、AK比例为3:1时,复合材料的击穿时间威布尔分布随填充量的变化趋势。表1列出了复合材料63.2%威布尔概率下的击穿时间和相对于EP提升的百分数。从表1可以看出,EP在该电场下的击穿时间为6.3 s,复合材料BdAK10-3/1、BdAK20-3/1和BdAK30-3/1的击穿时间显著提高,分别为18.3、27.4、31.9 s,相比于EP分别提升了190%、335%和406%。

图7(b)为混合填料填充量为30%时复合材料的击穿时间威布尔分布随Bd、AK比例的变化趋势。表2列出了复合材料63.2%威布尔概率下的击穿时间和相对于EP的提升率。从图7(b)和表2可以看出,Bd、AK的比例对击穿时间的影响显著,混合填料中Bd越多,击穿时间越长。值得注意的是,复合材料BdAK30-0/4的击穿时间为3.7 s,相比EP下降了41%;复合材料BdAK30-1/3、BdAK30-2/2、

BdAK30-3/1 的击穿时间均高于 EP, 分别为 12.3、25.0、31.9 s, 相比于 EP 分别上升了 95%、297% 和 406%。



(a)不同填充量



(b)不同比例

图7 复合材料的击穿时间

Fig.7 Breakdown time of composites

表1 不同填充量下复合材料的 63.2% 概率击穿时间(Bd/AK=3/1)

Tab.1 Breakdown time at 63.2% of probability of composites with different filling content(Bd/AK=3/1)

填充量/%	63.2% 概率击穿时间/s	相比EP提升率/%
EP	6.3	—
10	18.3	190
20	27.4	335
30	31.9	406

### 2.6 电气强度

选择对热导率最高、高频电压电场下耐受性最好的 BdAK30-3/1 复合材料和纯 EP 的电气强度进行测试, 电气强度的威布尔分布如图 8 所示。

从图 8 中可以看出, EP 的电气强度为 52.3 kV/mm, 复合材料 BdAK30-3/1 的电气强度为 48.4 kV/mm, 相比于 EP 降低了 7.5%, 下降幅度较小, 说明制备的复合材料仍具有优良的绝缘性能。

表2 不同比例下复合材料的 63.2% 概率击穿时间(30%)

Tab.2 Breakdown time at 63.2% of probability of composites under different proportion (30%)

Bd/AK	63.2% 概率击穿时间/s	相比EP提升率/%
EP	6.3	—
3/1	31.9	406%
2/2	25.0	297%
1/3	12.3	95%
0/4	3.7	-41%

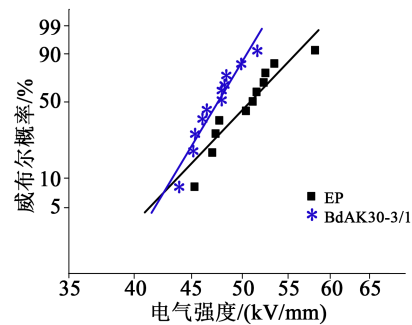


图8 电气强度的威布尔分布

Fig.8 Weibull distribution of power frequency electric strength

### 3 结论

(1) 采用多巴胺修饰 h-BN 和硅烷偶联剂 KH550 修饰纳米 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 表面, 提高了其混合物与环氧树脂的相容性。

(2) 制备了不同填充量、配比的复合绝缘材料, 测试发现, 当总填充量为 30%, 微米 h-BN 与纳米 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的质量比为 3:1 时, 复合材料的热导率为 1.1820 W/(m·K), 复介电常数虚部 ε'' 为 0.034, 击穿时间为 31.9 s, 相比环氧树脂分别提升了 697%、21.4% 和 406%, 电气强度仅降低了 7.5%。

综上所述, 本研究制备的复合材料具有优良的绝缘性能, 不仅可满足电力领域对于绝缘材料的要求, 亦适用于带电作业机器人等领域的绝缘防护。

### 参考文献:

- [1] 杜伯学,孔晓晓,肖萌,等. 高导热聚合物基复合材料研究进展[J]. 电工技术学报,2018,33(14):3149-3159.
- [2] 张新娜,刘成莉,李娟,等. 填充型树脂基导热绝缘复合材料的研究及应用进展[J]. 绝缘材料,2015,48(3):8-11.
- [3] 虞锦洪. 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.

- [4] 杨静晖,柏奇琪,张楠,等. 导热绝缘高分子复合材料的研究进展[J]. 绝缘材料,2017,50(8):14-21.
- [5] CAO B Y, LI Y W, KONG J, et al. High thermal conductivity of polyethylene nanowire arrays fabricated by an improved nanoporous template wetting technique[J]. *Polymer*,2011,52(8):1711-1715.
- [6] TAKEZAWA Y. Thermally conductive epoxy resins with controlled high order structure[J]. *Journal of Network Polymer*,2005,26(4):215-222.
- [7] SHEN S, HENRY A, TONG J, et al. Polyethylene nanofibres with very high thermal conductivities[J]. *Nature Nanotechnology*,2010,5(4):251-255.
- [8] 陆鸱. 导热型金刚石-环氧树脂复合材料的制备及性能研究[D]. 长春:吉林大学,2013.
- [9] YU A P, RAMESH P, ITKIS M E, et al. Graphite nanoplatelet - Epoxy composite thermal interface materials[J]. *Journal of Physical Chemistry C*,2007,111(21):7565-7569.
- [10] 张晓辉,徐传骥. 新型电力电子器件封装用导热胶粘剂的研究[J]. 电力电子技术,1999,33(5):61-62.
- [11] ZHOU W Y, WANG C F, AI T, et al. A novel fiber-reinforced polyethylene composite with added silicon nitride particles for enhanced thermal conductivity[J]. *Composites Part A - Applied Science and Manufacturing*,2009,40(6-7):830-836.
- [12] HUANG X Y, JIANG P K, XIE L Y. Ferroelectric polymer/silver nanocomposites with high dielectric constant and high thermal conductivity[J]. *Applied Physics Letters*,2009,95(24):242901-242903.
- [13] MAMUNYA Y P, DAVYDENKO V V, PISSIS P, et al. Electrical and thermal conductivity of polymers filled with metal powders[J]. *European Polymer Journal*,2002,38(9):1887-1897.
- [14] KUMLUTAS D, TAVMAN I H, COBAN M T. Thermal conductivity of particle filled polyethylene composite materials[J]. *Composites Science and Technology*,2003,63(1):113-117.
- [15] 王亮亮,陶国良. 聚丙烯/铝粉复合材料导热性能的研究[J]. 塑料工业,2003,31(12):47-48,54.
- [16] 陆绍荣,王霞瑜,张海良,等. 环氧树脂/无机纳米复合材料的研究进展[J]. 绝缘材料,2003,36(2):13-16.