

高导热低介电改性聚苯醚/SiO₂复合材料的 制备和性能研究

刘 意¹, 潘 丽¹, 王 玲¹, 黄双武¹, 阮文红²

(1. 安捷利(番禺)电子实业有限公司, 广东 广州 511455;

2. 中山大学 化学学院, 广东 广州 510006)

摘 要:针对高频高速电子封装材料中导热性能与介电性能难以协同提升的问题,本研究采用甲基乙烯基二甲氧基硅烷,对二氧化硅(SiO₂)进行表面接枝改性,通过溶液混合法将改性的SiO₂颗粒(m-SiO₂)填充到热固性聚苯醚(MPPO)中,制备了兼具低介电和高导热的m-SiO₂/MPPO复合材料。结果表明:m-SiO₂/MPPO复合材料的导热性能和热稳定性得到明显提升,同时保持了良好的介电性能,在m-SiO₂质量分数为70%时,复合材料的导热系数达到1.18 W/(m·K),是纯MPPO的4.92倍,10 GHz下的介电常数为3.11,介电损耗因子为0.004 4。热重分析显示,复合材料在氮气氛围中的5%和10%质量损失温度分别较纯MPPO分别提高了224.1℃和181.4℃,证明m-SiO₂通过与树脂基体的键合反应有效抑制了聚合物链段的热降解。

关键词:聚苯醚;复合材料;介电常数;介电损耗;高导热

Preparation and properties of MPPO/SiO₂ composites with high thermal conductivity, low dielectric constant and dielectric loss

LIU Yi¹, PAN Li¹, WANG Ling¹, HUANG Shuangwu¹, RUAN Wenhong²

(1. AKM (Panyu) Electronic Industrial Co., Ltd., Guangzhou 511455, China;

2. School of Chemistry, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510006, China)

Abstract: To address the bottleneck that thermal conductivity and dielectric properties are difficult to be synergistically enhanced for high-frequency and high-speed electronic packaging materials, silica (SiO₂) was modified via surface grafting with methylvinyltrimethoxysilane. The modified SiO₂ (m-SiO₂) particles were incorporated into thermosetting polyphenylene ether (MPPO) through solution blending, and m-SiO₂/MPPO composites with low dielectric performance and high thermal conductivity were successfully prepared. The results demonstrate that the thermal conduction capability and thermal stability of the composites are remarkably improved, while its favorable dielectric properties are well maintained. At an m-SiO₂ mass fraction of 70%, the thermal conductivity of the composite reaches 1.18 W/(m·K), which is 4.92 times higher than that of neat MPPO. Moreover, the dielectric constant is 3.11 at 10 GHz, and the dielectric loss factor is 0.004 4. Thermogravimetric analysis reveals that the thermal decomposition temperatures (at 5% and 10% weight loss) of the composite under nitrogen atmosphere are increased by 224.1℃ and 181.4℃, respectively compared with neat MPPO. It is verified that m-SiO₂ can effectively inhibit the thermal degradation of polymer segments through bonding reaction with the resin matrix.

Key words: PPO; composites; dielectric constant; dielectric loss; high thermal conductivity

0 引言

随着高频通信、物联网、AI、智能驾驶等新兴技术的快速发展,高频信号传输要求材料具有低介电常数(D_k)和介电损耗因子(D_f),而设备小型化导致单位面积功率密度升高,需要同步提升材料的导热

性能以应对热积累问题^[1-2]。聚合物基复合材料凭借其优异的绝缘性能、耐化学性、热稳定性、可加工性能,成为高频电路基板的关键材料。目前常见的聚合物包括聚四氟乙烯(PTFE)^[3]、环氧树脂(EP)^[4]、聚酰亚胺(PI)^[5-6]、聚苯醚(PPO)^[7]等,其中PPO具有优异的介电性能($D_k \approx 2.45$, $D_f \approx 0.002$)、耐热性,且其分子结构不含卤素,在高频通信领域展现出重要的应用价值,因而研究PPO基高频复合材料具有重要意义^[8-9]。

基金项目:广东省重点领域研发计划项目(2023B0101020002);中山大学-安捷利美维联合研发项目(SYSU-31000-20240927-0001);博士后科研启动项目(RDNP012024000001)。

PPO虽然具有优异的介电性能,但其为热塑性工程材料,尺寸稳定性较弱,且本征导热系数较小,因而限制了其在高功率密度电子封装中的应用^[10-12]。在树脂基体中添加填料是改善材料导热性能的重要方式之一^[13],WU R等^[14]将纳米BN加入到聚乳酸(PLA)中,当纳米BN质量分数为20%时,复合材料的径向导热系数增大到4.9 W/(m·K),在1 kHz下的介电损耗因子达到0.007。然而,填料的添加也会导致复合材料的相界面问题,大部分无机填料的表面具有亲水性,而有机聚合物的表面则具有疏水性,导致复合材料中两者相界面相容性较差。一方面,相界面相容性差会导致复合材料出现缺陷,劣化其力学性能和导热性能;另一方面,相界面相容性的差异将导致复合材料相界面发生界面极化,进而导致其介电常数和介电损耗增大^[15]。常见的解决方案是对填料进行表面有机改性或接枝改性^[16],LIU F等^[17]采用甲基三乙氧基硅烷改性SiO₂后添加到PTFE中制备复合材料,结果表明,改性SiO₂有效改善了填料与基体间的相容性,填料分散更为均匀,复合材料具有更低的介电损耗、更低的热膨胀系数及更好的力学性能。LUO K等^[18]采用乙烯基三甲氧基硅烷对SiO₂进行表面改性后填充到聚苯醚/苯乙烯-丁二烯-苯乙烯/三烯丙基异氰脲酸酯(PPO/SBS/TAIC)基体中制备复合材料,结果表明改性SiO₂填料有效提高了复合材料的热稳定性、导热性能和介电性能,在10 GHz下复合材料的介电常数和介电损耗因子分别为3.23和0.001 8,导热系数达到0.735 W/(m·K)。

在本课题组的前期工作中,通过对PPO进行再分配反应,并在其主链上接枝丙烯基团,得到改性PPO(MPPO),大幅改善了PPO的加工性能和尺寸稳定性^[10]。本研究提出双链接枝SiO₂协同交联改性策略,采用含双键的硅烷偶联剂对SiO₂进行改性后填充到MPPO中,利用双键之间的交联反应,大幅改善填料与MPPO基体之间的界面相容性,制备兼具低介电和高导热的MPPO基复合材料,并系统研究填料表面改性及含量对复合材料微观结构、介电性能和导热性能的影响规律,以期为高频电子封装材料设计提供理论依据和技术支撑。

1 实验

1.1 主要原材料

聚苯醚(PPO,S201型),日本旭化成株式会社;

双酚A、过氧化苯甲酰(BPO)、甲基丙烯酸酐、甲苯、4-二甲氨基吡啶、氯苯、甲醇、甲基乙烯基二甲氧基硅烷(MVDMS)和乙醇,均购买于上海阿拉丁生化科技股份有限公司;二氧化硅(SiO₂,粒径为1~2 μm),购买于南宫市盈泰金属材料有限公司。

1.2 试样的制备

1.2.1 低分子量聚苯醚的制备

参照文献[19],PPO的再分配反应过程如下:取36 g PPO和7.2 g双酚A添加到三口烧瓶中,随后倒入61 g甲苯溶液,将烧瓶置于油浴锅中,油浴温度设置为95℃,搅拌直至全部溶解为均一溶液。随后逐渐加入1.8 g过氧化苯甲酰(BPO),继续搅拌6 h,溶液呈深黄色。取1 L的烧杯倒入600 mL甲醇溶液,置于磁力搅拌器上,边搅拌边倒入反应完成的混合液,并继续搅拌1 h。经过滤后再重复该步骤,直至滤液呈无色透明状。将过滤后的滤饼放置在100℃的烘箱中烘干12 h,获得低分子量的PPO(LPPO)。

1.2.2 热固性PPO的制备

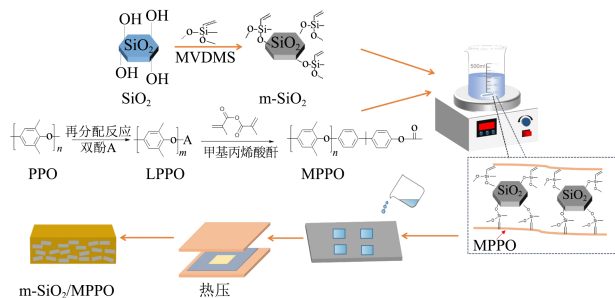
将3.0 g LPPO、0.7 g 4-二甲氨基吡啶和0.87 g甲基丙烯酸酐添加到三口烧瓶中,再将50 mL氯苯添加到烧瓶中,在氮气保护下置于70℃油浴下反应4 h。待溶液冷却至室温状态后,将溶液倒入装有600 mL甲醇的烧杯中,快速搅拌1 h,之后过滤、烘干得到热固性聚苯醚(MPPO)。

1.2.3 改性SiO₂/MPPO复合材料的制备

将1.0 g SiO₂粉末和一定量的MVDMS加入到乙醇中,在60℃下搅拌2 h,经过滤、洗涤、干燥后得到改性SiO₂(m-SiO₂)。然后,将MPPO、过氧化二异丙苯(DCP)和不同量的m-SiO₂(质量分数分别为40%、50%、60%、70%、80%)加入到甲苯溶液中,在60℃下搅拌0.5 h得到黏性液体,将其转移到模具中,在100℃下干燥4 h后,再在220℃、10 MPa下热压2 h,得到m-SiO₂/MPPO复合材料。制备过程如图1所示。

1.3 测试表征

使用美国Thermo Nicolet公司iS50+型红外光谱仪(FTIR)分析改性SiO₂及其复合材料的表面官能团;使用日本日立公司Hitachi S-4800型高分辨冷场发射扫描电镜观察复合材料的横截面形貌;使用美国PerkinElmer公司DSC-4000型差示扫描量热仪测试复合材料的比热容(C_p);使用美国PerkinElmer

图1 改性 SiO₂/MPPO 复合材料的制备Fig.1 Preparation of the modified SiO₂/MPPO composites

公司的 PE Pyris1 型热重分析仪测试 MPPO 及其复合材料的热稳定性能；使用德国 NETZSCH 公司 LFA467 型激光散射导热仪测试 MPPO 及其复合材料的热扩散系数(α)；利用排水法，使用电子天平测试材料的体积密度(ρ)，根据公式 $\lambda = \alpha \times \rho \times C_p$ ，计算 MPPO 及其复合材料的导热系数(λ)；采用美国 Keysight 公司的 P5003A 型介电性能测试系统，采用网络分析仪测试 MPPO 及其复合材料在 10 GHz 下的介电常数和介电损耗；使用美国 TA 仪器公司 DMA8500 型动态热机械分析仪测试 MPPO 及复合材料的储能模量、损耗模量和损耗因子与温度变化的关系。采用上海徐吉电气有限公司 CS9915AX 型可编程耐压测试仪测试复合材料的电气强度。

2 结果与讨论

2.1 SiO₂的表面改性

图2为 SiO₂的表面修饰过程及其红外光谱。从图2可以看出，MVDMS在加热、酸性条件下会水解为甲基乙烯基硅醇，其分子链上的-OH容易与 SiO₂表面上的-OH发生脱水缩合反应，得到表面改性 m-SiO₂。相比于 SiO₂，改性 SiO₂在波数为 3 416 cm⁻¹处出现了吸收峰，表明其表面含有-OH，而波数为 2 919、1 618、1 082 cm⁻¹处的吸收峰则可分别归因于-CH₂-、C=C和 Si-O-Si-的吸收振动峰，这也印证了图2中反应的发生，说明 SiO₂表面出现硅醇的官能团^[20-21]。

2.2 复合材料的形貌

图3为复合材料的截面扫描电镜图，图4为 m-SiO₂/MPPO 复合材料的横截面扫描电镜图及其 EDS 图。从图3可以看出，在填料质量分数为 60% 时，未改性 SiO₂/MPPO 复合材料的 SiO₂颗粒较为均匀地分散在树脂体系中(图3(a))，说明溶液混合法有利于填料在树脂中的分散，但也能明显看到颗粒

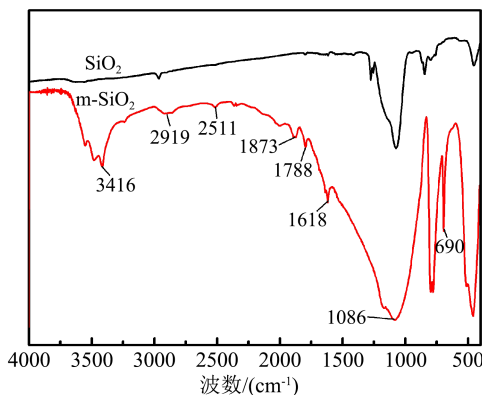
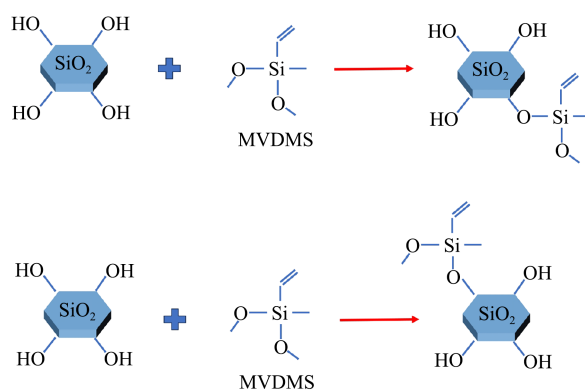
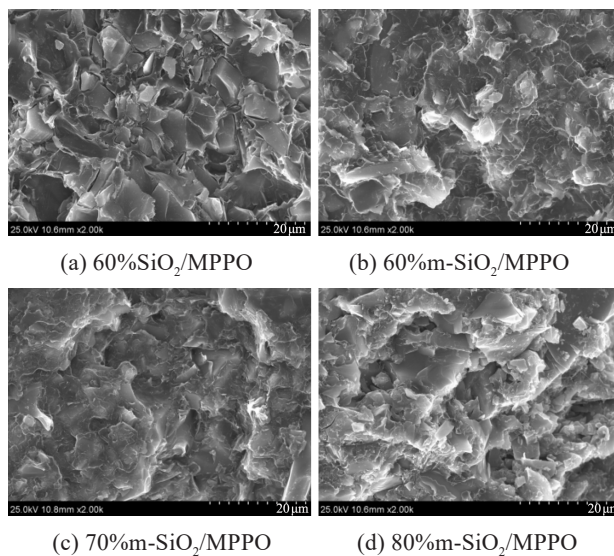
图2 m-SiO₂的化学反应机理图及其红外谱图Fig.2 Reaction mechanism schematic and FTIR of m-SiO₂

图3 复合材料的截面扫描电镜图

Fig.3 Cross-sectional SEM images of composites

与树脂之间存在缝隙。而在同等填充含量下，改性 m-SiO₂和 MPPO 的界面处没有明显的空洞结构(图3(b))，同时由图4复合材料的 EDS 图可以看到 m-SiO₂均匀分布在树脂基体中，表明 m-SiO₂与 MPPO 具有良好的相容性。另外，在填料质量分数为 70% 时，m-SiO₂/MPPO 复合材料只有非常少的空洞结构

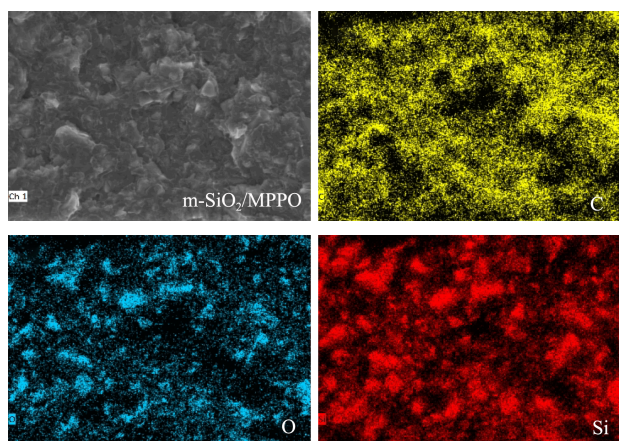


图4 m-SiO₂/MPPO 复合材料的横截面扫描电镜图及其 EDS 图

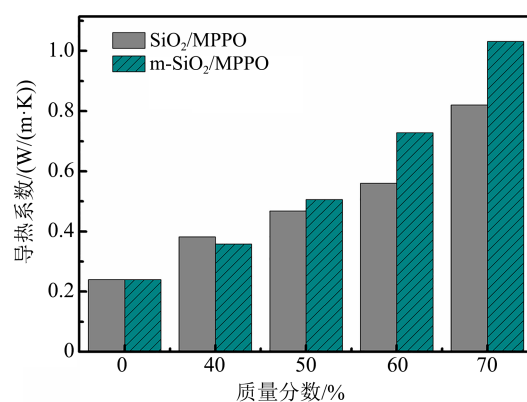
Fig.4 Cross-sectional SEM and EDS images of m-SiO₂/MPPO composites

(图 3(c)), 这个结果可以归因于在 m-SiO₂/MPPO 复合材料中相界面处的化学反应可以增加两者的相容性。随着填料含量的增加, 复合材料中的空隙率也会增加。当填料质量分数为 80% 时, m-SiO₂/MPPO 复合材料中存在较多的空隙(图 3(d)), 因空气的导热系数非常低, 空隙增加不利于复合材料导热性能的提高, 也会劣化复合材料的力学性能。

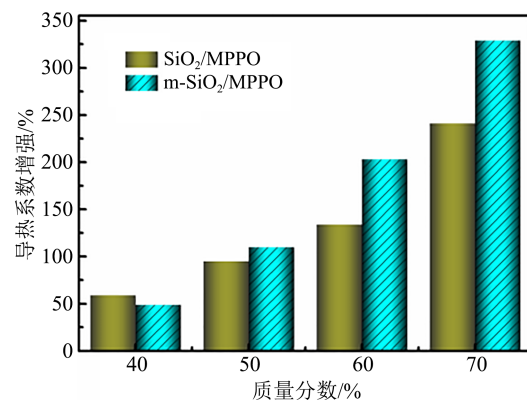
2.3 复合材料的导热性能

图 5 为 SiO₂/MPPO 复合材料的导热系数、导热系数增强幅度及界面反应机理。从图 5 可以看出, 纯 MPPO 的导热系数只有 0.24 W/(m·K)。随着填料的加入, SiO₂/MPPO 复合材料的导热系数迅速增大, 当 SiO₂ 的质量分数为 40% 时, SiO₂/MPPO 复合材料的导热系数达到 0.38 W/(m·K)。随着填料质量分数从 40% 增加到 70%, SiO₂/MPPO 复合材料的导热系数从 0.38 W/(m·K) 增加到 0.82 W/(m·K)。这个结果可以用热传导路径理论来解释。在高填料含量下, 导热填料更容易形成热传导通路, 并降低接触热阻, 使得复合材料的导热系数得到大幅提升。但需要注意的是, 当填料含量过大(质量分数超过 80%)后会出现较多的空洞结构(如图 3(d)所示), 而空气的导热系数仅为 0.02 W/(m·K), 将会导致复合材料的导热性能出现略微下降。

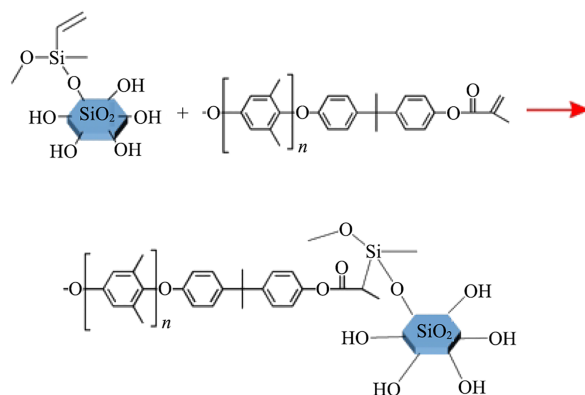
m-SiO₂/MPPO 复合材料的导热系数也呈现出类似的趋势。随着填料含量的不断增加, m-SiO₂/MPPO 复合材料的导热系数高于 SiO₂/MPPO 复合材料, 在填料质量分数为 70% 时, m-SiO₂/MPPO 复合



(a) 导热系数



(b) 导热系数增强幅度



(c) 界面反应机理

图5 SiO₂/MPPO 复合材料的导热系数、导热系数增强幅度及界面反应机理

Fig.5 Thermal conductivity, thermal conductivity enhancement, and interfacial reaction mechanism of SiO₂/MPPO composites

材料的导热系数达到 1.18 W/(m·K), 是纯 MPPO 的 4.92 倍。相对于 SiO₂/MPPO 复合材料, 由于 m-SiO₂/MPPO 中改性填料与树脂基体之间通过共价键反应大幅提升了相界面的相容性(如图 5(c)所示), 有利于减少复合材料界面处的声子散射, 提高复合材料的导热系数。

2.4 复合材料的介电性能

图6为m-SiO₂/MPPO复合材料的介电性能。由图6可知,m-SiO₂/MPPO复合材料的介电常数随着填料含量的增加而不断增大,在10 GHz的高频下,填料质量分数为70%时,复合材料的介电常数增加到3.11。这种现象可以用无机填料和有机聚合物之间的界面极化来解释^[22]。m-SiO₂和MPPO之间的界面电荷聚集形成许多“微电容器”,m-SiO₂作为微电容器的双极板,MPPO聚合物作为板之间的介电材料。填料含量的增加不仅增加了“微电容器”的数量,还减少了“微电容器”两极之间的距离,从而导致宏观上复合材料介电常数的增加^[23]。相反,复合材料的介电损耗随着填料的加入而降低,在填料质量分数为70%时,m-SiO₂/MPPO复合材料的介电损耗因子降至0.004 4。较高的填料含量会导致复合材料出现界面极化,但填料表面改性能够大幅改善其与基体的相容性,减少界面极化效应,有效增强填料在树脂基体中的分散,减少填料的团聚,从而降低复合材料的介电损耗。复合材料优异的介电性能使其在高频电子器件得到更广泛的应用。

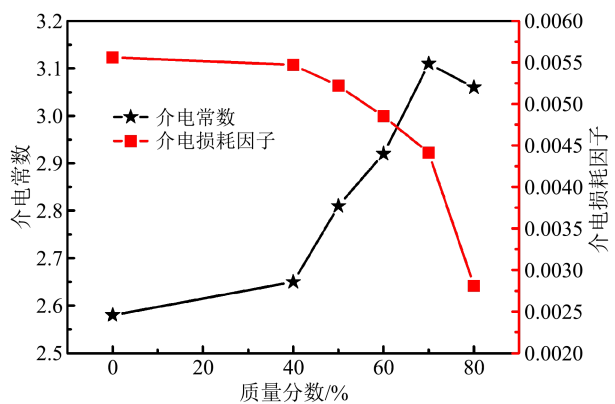


图6 m-SiO₂/MPPO复合材料的介电性能
Fig.6 The dielectric properties of m-SiO₂/MPPO composite

2.5 复合材料的热稳定性能

为了评估m-SiO₂/MPPO复合材料的热稳定性,对不同填料含量的复合材料进行了热性能分析,测试温度从30℃到800℃,采用5%失重对应的温度($T_{5\%}$)、10%失重对应的温度($T_{10\%}$)和耐热指数(T_{HRI} , $T_{HRI}=0.49\times[T_{5\%}+0.6\times(T_{30\%}-T_{5\%})]$ ^[25])分析复合材料的热稳定性,结果如图7和表1所示。根据图7和表1可知,纯MPPO的 $T_{5\%}$ 、 $T_{10\%}$ 和 T_{HRI} 分别为216.4、270.9、171.5℃,当m-SiO₂为50%时,m-SiO₂/MPPO复合材料的 $T_{5\%}$ 、 $T_{10\%}$ 和 T_{HRI} 分别增加到323.3、433.5、

201.8℃,当m-SiO₂的质量分数为70%时,m-SiO₂/MPPO复合材料的 $T_{5\%}$ 、 $T_{10\%}$ 相较纯MPPO分别提高了224.1℃和181.4℃。这种现象可以从两方面分析解释。一方面m-SiO₂粉末减少了复合材料中聚合物的热降解并防止分解产物从聚合物扩散到气相中;另一方面无机填料的表面改性可以提高填料与MPPO之间的结合力,也能增强复合材料的氧化扩散阻力,延缓MPPO树脂的分解,从而使复合材料的热分解温度和耐热性能提升。从结果可以看出,该复合材料具有优异的热稳定性,能满足微电子器件的要求^[24]。

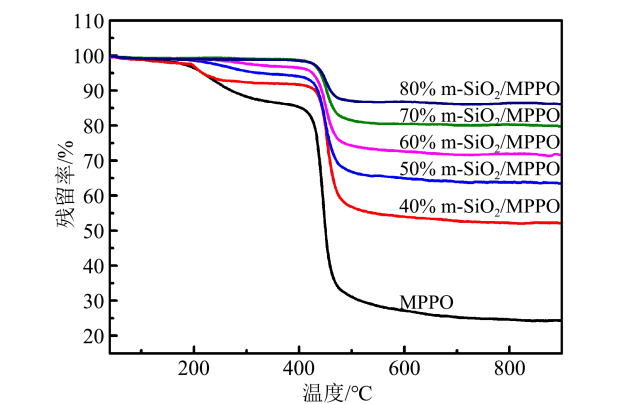
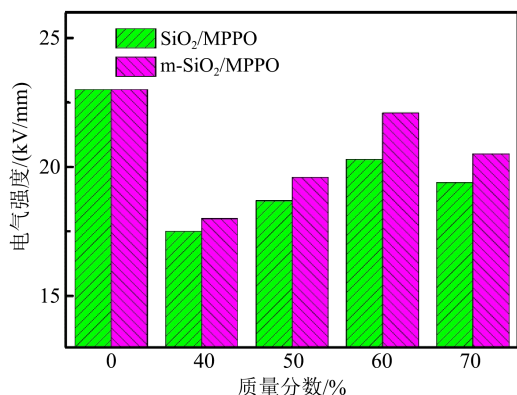


图7 m-SiO₂/MPPO复合材料的热重分析曲线
Fig.7 The TGA curves of m-SiO₂/MPPO composites

表1 m-SiO ₂ /MPPO复合材料的热性能					
Table 1 Thermal properties of m-SiO ₂ /MPPO composites					
样品	$T_{5\%}$ /℃	$T_{10\%}$ /℃	$T_{30\%}$ /℃	T_{HRI} /℃	800℃残留率 /%
MPPO	216.4	270.9	438.9	171.5	24.4
40% m-SiO ₂ /MPPO	215.7	430.2	458.6	177.1	52.1
50% m-SiO ₂ /MPPO	323.3	433.5	470.8	201.8	63.5
60% m-SiO ₂ /MPPO	425.1	442.9	—	—	71.7
70% m-SiO ₂ /MPPO	440.5	452.3	—	—	79.8
80% m-SiO ₂ /MPPO	443.5	459.7	—	—	86.2

2.6 复合材料的电气强度

图8为SiO₂/MPPO复合材料的电气强度测试结果。由图8可知,MPPO的电气强度为23.0 kV/mm,复合材料的电气强度下降,当m-SiO₂填充质量分数从40%增加60%时,m-SiO₂/MPPO复合材料的电气强度略有提高,这可能是由于m-SiO₂和MPPO之间的强界面作用力限制了电流对复合材料的影响。在填料质量分数为70%时,复合材料的电气强度降至20.5 kV/mm,这可归因于MPPO与m-SiO₂之间缺陷的增加。虽然随着填料含量的增加,复合材料的

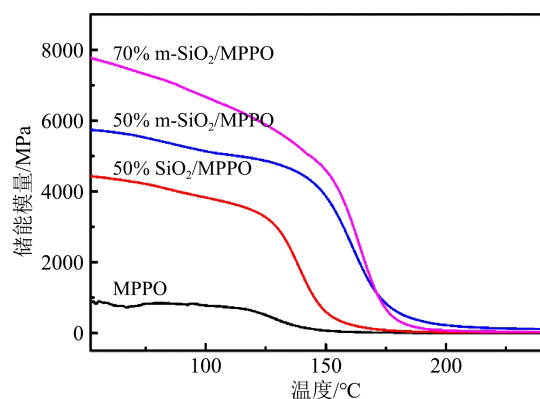
图8 SiO₂/MPPO复合材料的电气强度Fig.8 Electric strength of SiO₂/MPPO composites

电气强度有所降低,但仍然能够满足电子产品对材料绝缘性能的要求^[26]。

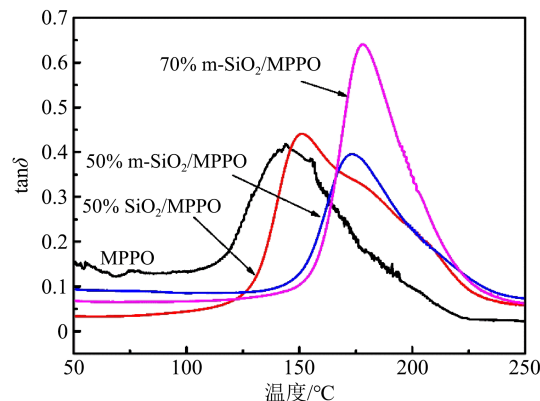
2.7 复合材料的动态力学性能

动态力学性能反映了复合材料中以弹性能形式储存的能量以及在应变过程中耗散的能量,填料的分散、填料的加载以及填料向基体的载荷传递是影响动态力学性能的主要因素。本文测试了复合材料的动态热力学性能,结果如图9所示。从图9(a)可以看出,随着m-SiO₂含量的增加,复合材料的储能模量显著增加。当m-SiO₂的质量分数增加到70%时,复合材料的储能模量增加到7 807 MPa,是纯MPPO(919 MPa)的8.5倍。同时可以看到填料改性也会影响复合材料的储能模量,当填料质量分数50%时,m-SiO₂/MPPO复合材料的储能模量为5 739 MPa,高于SiO₂/MPPO的储能模量(4 441 MPa)。这个结果可归因于m-SiO₂和MPPO的强界面作用力改善了填料在树脂基体中的分布,提高了填料的分散性,有利于载荷从填料转移到树脂基体中,使其动态变形阻力得到提升。

力学损耗因子($\tan\delta$)曲线中最大峰值对应的温度可以被视为复合材料的玻璃化转变温度(T_g)。从图9(b)可以看出,MPPO和含有50% SiO₂、50% m-SiO₂和70% m-SiO₂的复合材料 T_g 分别为144.0、151.0、161.7、165.4℃。添加改性SiO₂后复合材料的 T_g 略有提高,同时填料含量增加也会提升复合材料的 T_g ,原因在于m-SiO₂在基体中的良好分散以及MPPO和m-SiO₂之间的强界面作用力,使得其固有模量增加,同时限制了聚合物分子链在玻璃化过渡区中的运动,从而导致复合材料的玻璃化转变温度提高^[27]。



(a) 储能模量



(b) 损耗因子

图9 SiO₂/MPPO复合材料的储能模量和力学损耗因子Fig.9 Storage modulus and $\tan\delta$ curves of SiO₂/MPPO composites

3 结论

(1)使用含双键硅烷偶联剂改性SiO₂填充改性聚苯醚制备了高导热低介电复合材料。SEM和EDS结果表明,改性SiO₂能均匀分散在聚苯醚基体中,大幅改善了填料与树脂间的相容性。

(2)改性SiO₂的加入能有效改善树脂基体的导热性能。随着改性SiO₂含量的增加,复合材料的导热性能随之提升。当m-SiO₂的质量分数为70%时,复合材料的导热系数提高到1.18 W/(m·K),是纯MPPO的4.92倍。同时复合材料也保持了良好的介电性能,在10 GHz下,复合材料的介电常数和介电损耗因子分别为3.11和0.004 4,符合高频高速覆铜板对材料介电性能的要求。

(3)与纯MPPO相比,不同含量改性SiO₂的复合材料热分解温度(5%和10%失重时的温度)均有大幅提高,当m-SiO₂的质量分数为70%时,复合材料的热分解温度分别提高了224.1℃和181.4℃,复合材料的热稳定性能明显提升。

(4)在填料质量分数为70%时,m-SiO₂/MPPO复合材料的电气强度为20.5 kV/mm,储能模量达到7 807 MPa, T_g 达到165.4℃,表现出优异的绝缘和动态力学性能,有利于其在电子材料领域的应用。

参考文献 References

- [1] LUO K, WANG H, LI E, et al. Enhanced thermal conductivity and dielectric property of polyphenylene oxide/SiO₂ composite by adding functional boron nitride strategy[J]. *Journal of Alloys and Compounds*,2025,1010:177320.
- [2] 孙维凯,傅雅琴,常昊鑫,等.PTFE/FPI含氟聚酰亚胺复合薄膜的制备及高频工况下的介电性能研究[J]. *绝缘材料*,2025,58(6):35-42.
- SUN Weikai, FU Yaqin, CHANG Haoxin, et al. Synthesis of PTFE/FPI fluoropolyimide composite films and their dielectric properties under high frequency working conditions[J]. *Insulating Materials*,2025,58(6):35-42.
- [3] JIN W, LI A, LI Y, et al. Enhancing high-frequency dielectric and mechanical properties of SiO₂/PTFE composites from the interface fluorination[J]. *Ceramics International*,2022,48(19):28512-28518.
- [4] YAO T, ZHANG C, CHEN K, et al. Hydroxyl-group decreased dielectric loss coupled with 3D-BN network enhanced high thermal conductivity epoxy composite for high voltage-high frequency conditions[J]. *Composites Science and Technology*,2023,234:109934.
- [5] MEI X, ABDULLAEV A, YANG Q, et al. Hydrophobic PI/SiO₂ composites with excellent dielectric property and thermal stability via simple modification[J]. *Composites Science and Technology*,2024,249:110508.
- [6] ZHAO K, WEI S, CAO M, et al. Dielectric polyimide composites with enhanced thermal conductivity and excellent electrical insulation properties by constructing 3D oriented heat transfer network[J]. *Composites Science and Technology*,2024,245:110323.
- [7] DING S, PENG H, REN H, et al. Investigation on preparation and properties of novel polyphenylene oxide based composites by injection molding[J]. *Ceramics International*,2020,46(18):29067-29072.
- [8] 朱新军,邹水平,谢富春,等.聚苯醚基覆铜板热性能和介电性能研究[J]. *广东化工*,2022,49(20):47-49.
- ZHU Xinjun, ZOU Shuiping, XIE Fuchun, et al. Thermal and dielectric properties of copper clad laminate based on PPO[J]. *Guangdong Chemical Industry*,2022,49(20):47-49.
- [9] KIM B, PARK S, YOO M J, et al. Graft architected poly(phenylene oxide)-based flexible films with superior dielectric properties for high-frequency communication above 100 GHz[J]. *ACS Applied Polymer Materials*,2024,6(8):4708-4717.
- [10] LIU Y, LIAO L Y, RUAN W H, et al. Designing interfacial reaction for BN@Si/Poly(phenylene oxide) composites with simultaneous improved thermal conductivity and dielectric properties [J]. *ACS Applied Polymer Materials*,2024,6(1):627-637.
- [11] LIAO L Y, RUAN W H, ZHANG M Q, et al. Improving the dimensional stability of polyphenylene oxide without reducing its dielectric properties for high-frequency communication applications[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*,2023,62(18):7007-7016.
- [12] 卢翔,曾鸣,谭登祚,等.面向超高频通信应用的低介电聚苯醚树脂的研究进展[J]. *绝缘材料*,2022,55(5):10-18.
- LU Xiang, ZENG Ming, TAN Dengru, et al. Research progress in low dielectric polyphenylene oxide for super high-frequency communication applications[J]. *Insulating Materials*,2022,55(5):10-18.
- [13] 韩莹,张宇轩,袁天舒,等.立方氮化硼填充聚酰亚胺制备导热复合薄膜[J]. *绝缘材料*,2025,58(6):25-34.
- HAN Ying, ZHANG Yuxuan, YUAN Tianshu, et al. Thermal conductivity polyimide composite films filler by cubic boron nitride[J]. *Insulating Materials*,2025,58(6):25-34.
- [14] WU R, SONG X, JI Y, et al. In-situ exfoliation of hexagonal boron nitride during the forced flow of highly elastic polylactide to fabricate electrospun fibrous film with high thermal conductivity and low dielectric loss[J]. *Composites Science and Technology*,2024,251:110573.
- [15] MIRIZZI L, D'ARIENZO M, NISTICÒ R, et al. Al₂O₃ decorated with polyhedral silsesquioxane units: an unconventional filler system for upgrading thermal conductivity and mechanical properties of rubber composites[J]. *Composites Science and Technology*,2023,236:109977.
- [16] 赵春宝,徐随春,赵玮,等.BT树脂/氮化硼导热复合材料的制备与性能研究[J]. *化工新型材料*,2018,46(12):90-93.
- ZHAO Chunbao, XU Suichun, ZHAO Wei, et al. Preparation and property of thermal conductive BT/boron nitride composite [J]. *New Chemical Materials*,2018,46(12):90-93.
- [17] LIU F, JIN Y, LI J, et al. Improved coefficient thermal expansion and mechanical properties of PTFE composites for high-frequency communication[J]. *Composites Science and Technology*,2023,241:110142.
- [18] LUO K, WANG H, LI E, et al. Polyphenylene oxide/SiO₂ composites: towards ultra-low dielectric loss and high thermal conductivity of microwave substrates[J]. *Applied Surface Science*,2024,672:160809.
- [19] ZHOU Y, PENG Z, JI J, et al. Fluorinated low molecular weight poly(phenylene oxide): synthesis, characterization, and application in epoxy resin toward improved thermal and dielectric properties[J]. *European Polymer Journal*,2021,157:110674.
- [20] LIU Y, LAN B, RUAN W, et al. Enhancing thermal conductivity and dielectric properties of Al₂O₃@Si/polyphenylene oxide composites by surface functionalization[J]. *Materials Today Communications*,2024,38:108133.
- [21] ABDELSALAM A A, WARD A A, ABDEL-NAEEM G, et al.

- Effect of alumina modified by silane on the mechanical, swelling and dielectric properties of Al_2O_3 /EPDM/SBR blend composites[J]. *Silicon*,2023,15:3609-3621.
- [22] ZANDIEH A, IZADI H, HAMIDINEJAD M, et al. Molecular engineering of the surface of boron nitride nanotubes for manufacture of thermally conductive dielectric polymer composites [J]. *Applied Surface Science*,2022,587:152779.
- [23] SINGH V, KULKARNI A R, RAMA MOHAN T R. Dielectric properties of aluminum-epoxy composites[J]. *Journal of Applied Polymer Science*,2003,90(13):3602-3608.
- [24] GAO Z, ZHAO L. Effect of nano-fillers on the thermal conductivity of epoxy composites with micro- Al_2O_3 particles[J]. *Materials & Design*,2015,66:176-182.
- [25] ZHOU W, QI S, TU C, et al. Novel heat-conductive composite silicone rubber[J]. *Journal of Applied Polymer Science*,2007,104(4):2478-2483.
- [26] GE M, ZHANG J, ZHAO C, et al. Effect of hexagonal boron nitride on the thermal and dielectric properties of polyphenylene ether resin for high-frequency copper clad laminates[J]. *Materials & Design*,2019,182:108028.
- [27] ZHI C, BANDO Y, TANG C, et al. Large-scale fabrication of boron nitride nanosheets and their utilization in polymeric composites with improved thermal and mechanical properties[J]. *Advanced Materials*,2009,21(28):2889-2893.

收稿日期:2025-06-12;修回日期:2025-07-25。

作者简介:

刘意(1990—),男(汉族),湖北钟祥人,高级工程师,博士,主要从事功能高分子复合材料的研发及应用工作。