

液晶环氧树脂 / 氮化硼片 / 玻璃纤维三相复合材料的制备与性能研究

李 晨^{1,2} 郭 坤² 曾小亮² 朱德亮¹ 孙 蓉²

¹(深圳大学 深圳 518055)

²(中国科学院深圳先进技术研究院 深圳 518055)

摘 要 随着电子产品中电子元器件逐渐趋向于小型化和高度集成化, 其内部产生的大量热量会使电子器件的各项性能受到影响。为了及时散出热量, 需要制备出一种高热导率的复合材料。该研究采用性能优异的液晶环氧树脂作为基体, 以六方片状氮化硼和玻璃纤维作为填料, 制备出一种热导率高且综合性能优异的液晶环氧树脂基复合材料。结果显示, 所制备的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维复合材料的热导率在厚度方向最高可达 1.6 W/(m·K)、在平面方向最高可达 5.85 W/(m·K)。同时, 该复合材料还具有较高的玻璃化转变温度(高于 180 °C)和优异的热稳定性(热分解温度高于 365 °C)。

关键词 液晶环氧树脂; 氮化硼; 玻璃纤维; 复合材料; 高导热

中图分类号 TQ 323.4 **文献标志码** A **doi**: 10.12146/j.issn.2095-3135.20180913002

Preparation and Properties of Liquid Crystal Epoxy/Boron Nitride Nanosheet/Glass Fiber Three-Phase Composites

LI Chen^{1,2} GUO Kun² ZENG Xiaoliang² ZHU Deliang¹ SUN Rong²

¹(Shenzhen University, Shenzhen 518055, China)

²(Shenzhen Institutes of Advanced Technology, Chinese Academy of Sciences, Shenzhen 518055, China)

Abstract In recent years, as components in electronic products have developed towards higher integration degree, the large amount of heat generated by components has affected various performances of electronic devices. In order to efficiently diffuse the heat, it is necessary to prepare composite materials with high thermal conductivity. In this study, liquid crystal epoxy resin with excellent performance was used as the matrix, and hexagonal flake boron nitride and glass fiber were used as fillers to prepare composite materials with high thermal conductivity and excellent comprehensive performance. Experiment results show that the prepared liquid crystal epoxy resin/boron nitride nanosheet/glass fiber composite has a thermal conductivity of up to 1.6 W/(m·K) in the thickness direction and up to 5.85 W/(m·K) in the plane direction. In addition, the

收稿日期: 2018-09-13 修回日期: 2018-11-16

基金项目: 科技部国家重点研发计划项目(2017YFB0406000); 中国科学院前沿科学重点研究项目(QYZDY-SSW-JSC010); 广东省重点实验室(2014B030301014); 深圳市基础研究项目(JCYJ20150831154213681)

作者简介: 李晨, 硕士, 研究方向为聚合物基热界面材料; 郭坤, 硕士, 研究方向为聚合物基热界面材料; 曾小亮, 副研究员, 硕士研究生导师, 研究方向为聚合物基热界面材料; 朱德亮(通讯作者), 教授, 硕士研究生导师, 研究方向为氧化物半导体材料的制备和应用, E-mail: dlzhu@szu.edu.cn; 孙蓉(通讯作者), 研究员, 博士研究生导师, 研究方向为先进电子封装材料与技术, E-mail: rong.sun@siat.ac.cn。

composite also possesses a high glass transition temperature (above 180 °C) and excellent thermal stability with a thermal decomposition temperature higher than 365 °C.

Keywords liquid crystal epoxy resin; boron nitride; glass fiber; composite material; high thermal conductivity

1 引 言

随着科学技术的发展,电子产品如手机、电脑、相机等更新换代迅速,小型化和轻量化成为电子产品的发展趋势。然而,极大地追求信号高速传输、大容量化,功率器件将走向高电压、大电流化的工作场景,由此带来严重的内部发热现象,影响了电子元器件的性能和整个系统运行的可靠性。解决电子产品中电子元器件的散热问题已受到企业生产家和科研人员的重视^[1-3]。现有的导热复合材料的导热性能已难以满足电子工业发展的需求。因此,解决电气电子设备的结构散热问题,亟需开发研制新型、具有优良综合性能的高导热复合材料。这也是目前国际电气电子领域的研究热点之一。

有机基板作为电子元器件中最基本的结构之一,主要为芯片提供机械性能的支撑和绝缘性能的保护。传统的基板材料主要选用普通环氧树脂为基体,二氧化硅为导热填料^[4-6]。该材料结合了高分子聚合物密度小、电绝缘性能好、耐化学腐蚀和容易加工成型等优点,还综合了无机粒子较低的热膨胀系数和玻璃纤维布优异的力学性能^[7]。然而,这种传统的基板材料导热性能较差,导热系数仅为 0.4 W/(m·K),无法有效快速地传递芯片所产生的热量,严重降低了整个电子元器件工作效率和使用寿命^[8]。因此,开发具有高导热系数的有机基板复合材料对提高电子器件的工作效率、可靠性及延长寿命具有重要的意义^[9-11]。国内外在液晶环氧树脂两

相复合材料已进行了较多的研究,Zhong 等^[12]制备了液晶环氧树脂和碳纤维两相复合材料并研究了复合材料中液晶环氧树脂的取向和固化行为。研究发现,液晶环氧树脂可发生自取向并且这种自取向结构能够加速固化反应,增强两相复合材料的弹性模量等力学性能。之后,又有一些研究者^[13-16]进行导热填料包括氧化铝、氮化硼、氮化铝等填充液晶环氧树脂复合材料性能的研究,也得到了较为理想的热导率、电学和力学性能。但是,结果表明两相液晶环氧树脂复合材料功能性过于单一,很难兼备良好的热学和力学性能。故如何使复合材料同时表现出较高的导热性能、良好的力学性能以及较高的热稳定性已逐渐引起了研究者的关注^[17]。

氮化硼(BN)是一种 III-V 族化合物,存在多种晶态结构。其中,六方晶型(Hexagonal Boron Nitride, *h*-BN)是硼(B)和氮(N)原子以 sp^2 杂化方式结合起来的层状结构,与石墨的层状结构相似,其内部结构是由平坦网状以 ABABAB 堆叠而成,每一个层面内的原子都是以共价键结合,不易断裂、较稳定。氮化硼因其具有较高的导热系数(55~600 W/(m·K))、化学性质稳定、耐腐蚀、高热稳定性、低热膨胀系数、低介电常数和低介电损耗特点而成为重要的导热填料之一^[18-19]。玻璃纤维相对于普通的无碱玻璃纤维而言,具有更高的力学性能、更强的耐腐蚀耐热性能、优良的电绝缘性和介电性能等,因此使用玻璃纤维布作为增强纤维可以增强基体材料的一系列性能^[20-21]。本研究以六方片状氮化硼为导热填

料, 液晶环氧树脂为基体, 并加入力学性能优异的玻璃纤维布, 以期制备出综合性能优异的三相复合材料。为评估该复合材料的性能, 本研究通过控制相同的玻璃纤维布含量, 采用不同添加量导热填料对复合材料的导热性能、热稳定性、介电性能和力学性能等进行研究。

2 材料与方法

2.1 实验原料

液晶环氧树脂为 DGE-BHBTMBP (甘肃省化工研究院), 相对分子分子量 354, 环氧值为 0.53 mol/100 g; 固化剂为二氨基二苯砒 (DDS, 国药集团化学试剂有限公司); 促进剂为三苯基膦 (TPP, 国药集团化学试剂有限公司); 2-丁酮 (国药集团化学试剂有限公司), 以上试剂均为分析纯级, 在实验中试剂均没有进行二次纯化直接使用。实验中所采用的导热填料为六方片状氮化硼 (BN, DENKA), 片状大小为 10 μm ; 增强纤维为玻璃纤维布 (SiO_2 , 深圳市赛龙自动化科技有限公司)。

2.2 实验仪器

自动棒式涂布机 (上海林纸科学仪器有限公司), 用来将分散好的浆料涂布在玻璃纤维布上; 电热恒温鼓风干燥箱 (上海一恒科技有限公司), 用来对混合后的三相复合材料进行干燥; 手动式压片机 (益成检测仪器 (东莞) 有限公司), 用来对干燥后的三相复合材料进行热压; 超声波清洗机 (CQ-25-6, 上海音波声电科技有限公司), 用来将溶解在丁酮溶液中的树脂体系超声分散; 行星式球磨机 (PMZL, 南京驰顺科技发展有限公司), 用来球磨氮化硼片与分散好的树脂溶液。

2.3 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的制备

首先, 称量与液晶环氧树脂 DGE-BHBTMBP 完全化学计量比相同的固化剂 DDS 进行预固化,

预固化条件为 150~180 $^{\circ}\text{C}/20\sim30\text{ min}$ 。然后, 将预固化后的树脂体系溶解在 50 wt% 的丁酮溶液中并超声分散, 再分别称取适量直径为 10 μm 的氮化硼片 (控制氮化硼片的质量分数为 0~60 wt%) 与分散好的树脂溶液进行球磨分散, 条件为 300~500 r/min、12 h。接着, 将分散好的浆料分别涂布在玻璃纤维布上, 其中控制玻璃纤维布在三相复合材料中所占比例不变, 待干燥后进行热压, 热压条件为 5~15 MPa/2~4 h。最后, 将热压后的树脂片取出后放入烘箱中进行后固化, 固化条件为 150~220 $^{\circ}\text{C}/2\text{ h}$ 。

2.4 表征方法

2.4.1 导热系数

本研究采用中国台湾瑞领 (LW, 9389 TIM) 热阻和导热系数测试装置, 该仪器是由三个相同的测试装置组成。其原理是在稳态条件下, 在测试设备一端提供稳定热源, 通过两块金属板对样品进行加热, 热流通过三个测试装置再通过两金属板及之间的样品到达三个接收装置。当计量单元达到稳定传热状态后, 通过测试样品厚度、样品面积、热流量以及金属板两端的测试装置和接收装置的温度差, 最终导热系数可由这些数据计算得出。

2.4.2 热重分析

本研究采用热重分析仪 (TG, SDT-Q600 analyzer) 对实验样品的热分解温度、残炭率等进行表征和测试。它是在电脑程序控制温度变化的条件下, 测量并记录物质的质量和温度变化关系的一种测试技术。测试样品的制备方法如下: 首先, 将固体样品在真空干燥箱中 60 $^{\circ}\text{C}$ 干燥 3~5 h; 然后, 取 5~10 mg 的样品置于氧化铝坩埚中, 在 100 mL/min 的氮气氛围下, 以 10 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 的升温速度, 从 30 $^{\circ}\text{C}$ 升温至 800 $^{\circ}\text{C}$, 记录此过程中样品质量随温度的变化情况。

2.4.3 动态机械分析

本研究采用动态机械分析 (DMA Q800, TA

Instruments)对实验样品的储存模量、损耗模量及玻璃化转变温度等进行表征和测试。它是在电脑程序控制温度变化的条件下,测量并记录样品在受非振荡性负荷下所产生的形变与温度变化关系的一种测试技术。测试样品的制备方法如下:先将固体薄膜状样品在真空干燥箱中 60 °C 干燥 3~5 h;然后,用抛光机将样品表面打磨均匀平整,样品尺寸长 3.0~4.0 cm、宽 0.6~0.8 cm;最后,用薄膜拉伸夹具进行测试,在 100 mL/min 的氮气氛围下,以 3 °C/min 的升温速度,从 30 °C 升温至 350 °C,记录此过程中薄膜样品的应力-应变随温度的变化情况。

2.4.4 电子扫描显微镜

本研究采用扫描电子显微镜(SEM)对实验样品进行表面形貌的观察。测试样品为薄膜片状,先将样品薄膜置于真空干燥箱中 60 °C 干燥 3~5 h;然后,将样品测试台使用乙醇清洗干净,烘干后均匀贴上导电胶,并将干燥好的样品平整地贴在导电胶表面,对制得的样品在 10 kV 的加速电压下进行真空喷金 20 min;最后,采集多种放大倍数的样品图像。

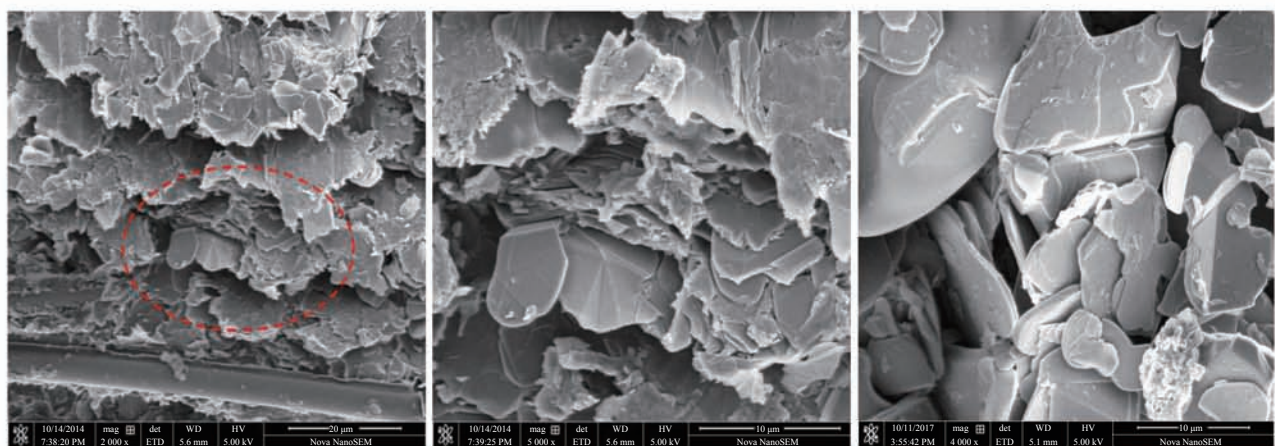
2.4.5 介电性能表征

本研究采用安捷伦阻抗分析仪(Agilent 4991)对实验样品的介电常数、介电损耗等进行测试和表征。该仪器采用自动平衡电桥技术,将平衡电桥看作一个放大器电路,基于欧姆定律 $U=I \times R$ 进行测量。测试样品的制备方法如下:首先,将固体薄膜状样品在真空干燥箱中 60 °C 干燥 3~5 h 后;然后,将固体薄膜样品裁成标准圆状,并用螺旋测微器测量样品的厚度;最后,在样品表面均匀涂上一层银浆,之后置于阻抗分析测试仪器上测试其电容和介电损耗。

3 结果与讨论

3.1 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的微观形貌表征

图 1 为 50 wt% 氮化硼添加量的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的截面扫描电子显微镜(SEM)图。从图 1(a)中红色圈内可以看出,氮化硼片表现出良好的平面取向,这种有序结构有利于导热载体声子的快速传播,对提高



(a) 50 wt% 氮化硼添加量的复合材料的截面 SEM 图

(b) 为(a)中红色圈内的 SEM 放大倍率图

(c) 氮化硼片的 SEM 形貌图

图 1 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料截面的扫描电子显微镜图

Fig. 1 Scanning electron microscopy (SEM) image of a cross section of a liquid crystal epoxy resin/boron nitride nanosheet/glass fiber three-phase composite material

复合材料整体的导热性能有积极作用。图 1(c) 是氮化硼片的 SEM 形貌图, 由图可以看出, 氮化硼片的平面尺寸为 $8\sim 12\ \mu\text{m}$ 。氮化硼片在取向方向即复合材料的平面方向内表现为六方结构氮化硼晶体的共价键相连方式, 而在层间方向即复合材料的厚度方向上属于范德华作用, 其作用力远远小于共价键, 由此推测复合材料沿平面方向的导热性能优于其沿厚度方向的性能。

3.2 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的导热性能

图 2 为氮化硼质量分数为 $0\sim 60\ \text{wt}\%$ 时复合材料的厚度和平面方向导热系数图。从图 2 可以看出, 复合材料的导热系数随着填料量的增加而增加, 在氮化硼片的添加量为 $50\ \text{wt}\%$ 时导热系数达到最大值, 厚度方向和平面方向的导热系数分别为 $1.60\ \text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 和 $5.85\ \text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 。当填料添加量较少时, 氮化硼片被树脂包裹并相互独立, 无法形成有效的导热链, 因此导热系数增加很慢。随着氮化硼热粒子量的增加, 粒子堆积趋

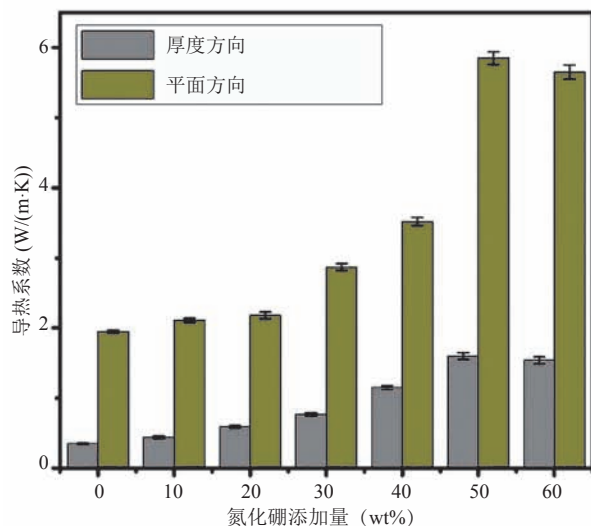


图 2 氮化硼质量分数为 $0\sim 60\ \text{wt}\%$ 时复合材料的厚度和平面方向导热系数

Fig. 2 Thickness and plane direction thermal conductivity of composite materials with boron nitride mass fraction from 0 to 60 wt%

于紧密, 有效接触面积增加, 有利于形成导热网络, 通过导热粒子之间的传热路径比率增大, 传热速率增大, 导热系数明显提高。当添加量继续增加时, 导热粒子彼此间的导热通路已经连通, 新的导热路径增加不明显, 并且大量的填料添加量可能导致填料在复合材料内部形成团聚等缺陷, 致使导热系数不再增大, 所以当氮化硼添加量为 $50\ \text{wt}\%$ 时, 复合材料的导热性能最好。同时, 从图 2 还可以看出, 液晶环氧树脂/氮化硼片复合材料平面方向导热系数明显高于厚度方向导热系数, 在氮化硼添加量为 $50\ \text{wt}\%$ 时, 平面方向导热系数为厚度方向的 $3\sim 4$ 倍。这是因为氮化硼片在复合材料中有序取向排列, 氮化硼片沿平面方向呈现共价键链接(图 1), 作用力明显强于片层之间的范德华力, 有效地抑制了声子散射, 提高了复合材料的导热性能。

3.3 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的热性能

图 3 为氮化硼添加量为 $10\sim 60\ \text{wt}\%$ 时的液

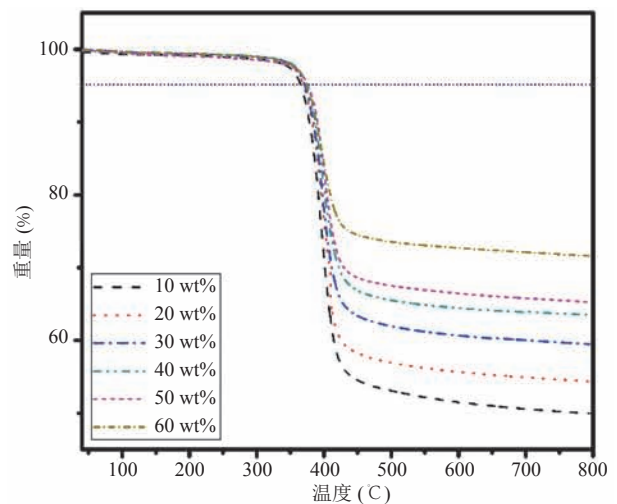


图 3 氮化硼添加量为 $10\sim 60\ \text{wt}\%$ 时的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的热重分析曲线图

Fig. 3 Thermogravimetric analysis of liquid crystal epoxy resin/boron nitride nanosheet/glass fiber cloth three-phase composites with 10-60 wt% boron nitride added

晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维布三相复合材料的热重分析曲线图。从图 3 可以看出,复合材料各组分的 $T_{50\%}$ (50 wt% 所对应的温度)均大于 $360\text{ }^{\circ}\text{C}$,并随着填料的增加而提高。复合材料热分解的过程是,随着温度升高在复合材料表面的高分子聚合物出现热分解,但随着加入高稳定性及高比热容的氮化硼片和玻璃纤维布,可使复合材料表面在热分解过程中形成一层致密的无机物膜来阻止复合材料继续产生热分解。同时,具有高熔点的无机粒子与聚合物之间形成很多物理和化学交联点,使分子间或分子链间的作用力增大,从而提高复合材料的热稳定性。

图 4 为氮化硼添加量为 $0\sim 60\text{ wt}\%$ 时的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的动态机械分析曲线图。存储模量和损耗模量分别为复合模量的实部和虚部,其中存储模量与应力作用过程中贮存于样品中的机械能量成正比,损耗模量表示应力作用过程中材料所消散的能量。从图 4(a)可以看出,复合材料的存储模量随着氮化硼添加量的增加变化不明显,说明填料的增加对应力作用于复合材料中所贮存

的机械能量影响不大;而 $50\text{ wt}\%$ 氮化硼添加量的复合材料的存储模量偏差较大,这可能是测试过程中的操作引起的。损耗模量的损耗峰所对应的温度为材料的玻璃化转变温度,反映聚合物分子链从冻结到解冻开始运动的一个过程。从图 4(b)可以看出,玻璃化转变温度随着填料添加量的增加而下降,是由于随着填料的增加,聚合物在复合材料中相对量减少,使复合材料的整体交联密度降低,从而使分子链容易实现解冻运动这一现象。

3.4 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的介电性能

图 5 为氮化硼添加量为 $0\sim 60\text{ wt}\%$ 时的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的介电性能。图 5(a)为复合材料的介电常数随着氮化硼的添加量和频率的不同而变化的一个过程。从图 5(a)可以看出,在 $1\ 000\text{ Hz}$ 时,液晶环氧树脂的介电常数为 5.2 ,较传统的环氧树脂 ($4.6\sim 5.0$)有所增大。这是由于液晶环氧树脂含有极性较强的基团,而极性基团在电场条件下容易产生电偶极矩,且极性强的基团产生的电

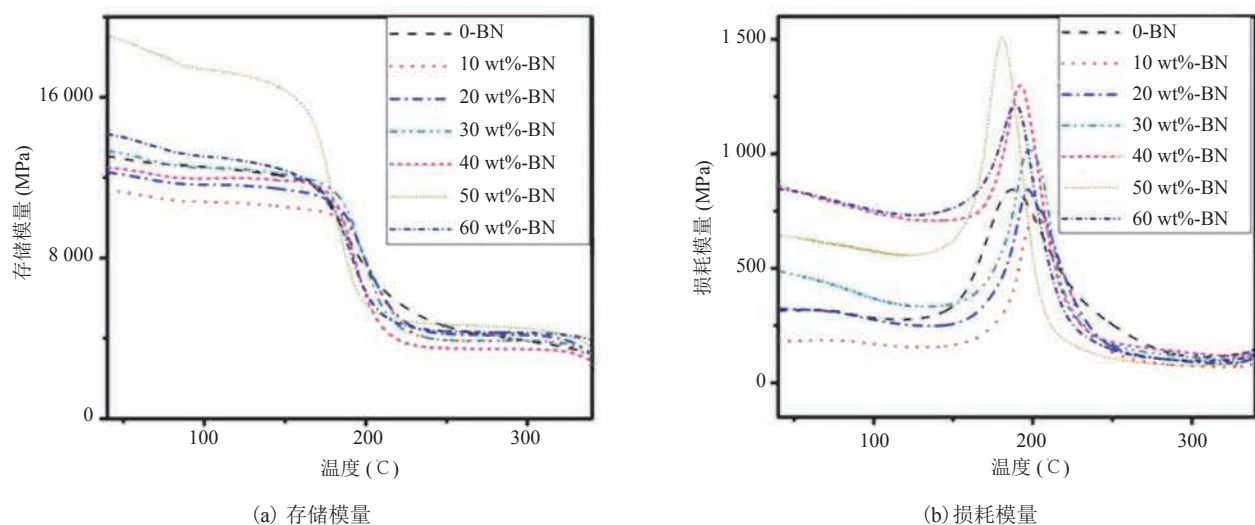


图 4 氮化硼添加量为 $0\sim 60\text{ wt}\%$ 时的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的动态机械分析曲线图

Fig. 4 Dynamic mechanical analysis curve of $0\sim 60\text{ wt}\%$ boron nitride addition amount of liquid crystal epoxy resin/boron nitride nanosheet/glass fiber three-phase composite material

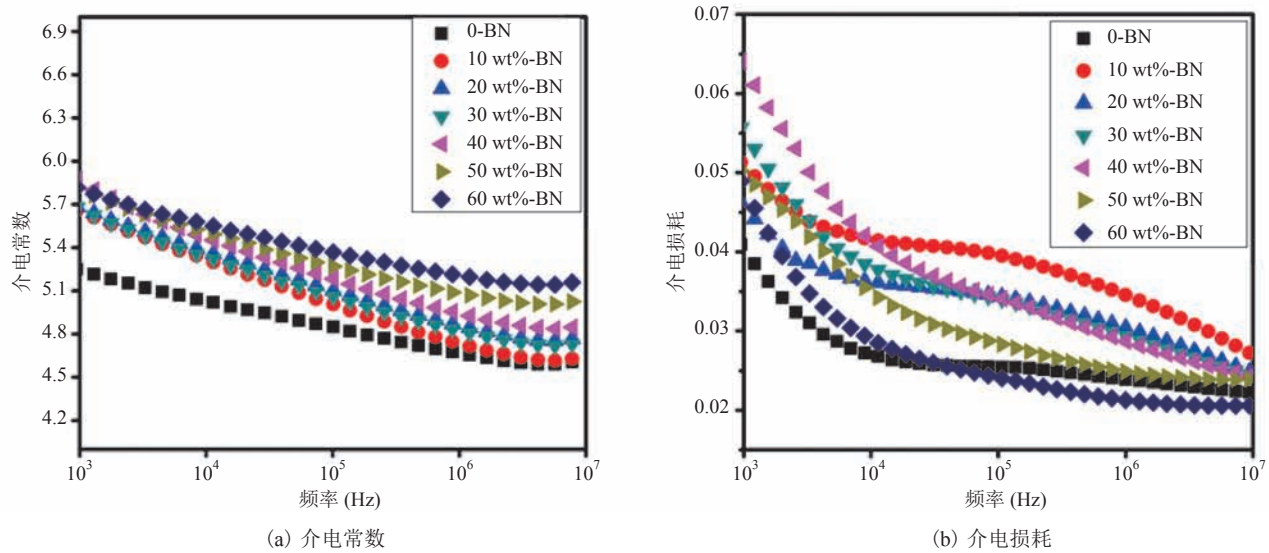


图 5 氮化硼添加量为 0~60 wt% 时的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维复合材料的介电性能

Fig. 5 Dielectric properties of liquid crystal epoxy resin/boron nitride nanosheet/glass fiber composite with 0-60 wt% boron nitride addition

偶极矩较大, 使其介电常数也较大。复合材料的介电常数随着填料添加量的增大而增大, 这是因为复合材料中填料量的增加会使微观界面增多, 由于树脂基体和填料在介电常数上的差异会产生较强的作用, 从而使介电常数增大; 单一组分的介电常数随着频率的增加而降低, 这是因为在低频频段内, 随着频率的提高会产生界面极化, 故介电常数下降。从图 5 (b) 可以看出, 介电损耗随着填料添加量的增加而增加。这是因为随着填料的增加, 复合材料中的界面增多, 从而使其损耗增大; 而在低频频段内随着频率的增加损耗下降, 是因为在低频频段内产生了界面极化。

图 6 为氮化硼添加量为 0~60 wt% 时的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻纤纤维三相复合材料的应力-应变和杨氏模量曲线图。从图 6 可以看出, 三相复合材料的拉伸强度随着填料量的增加先提高后下降, 但由于玻璃纤维布的添加, 使复合材料的杨氏模量保持在较高的程度 (>2.0 GPa), 能够达到电子封装材料应用的要求。拉伸强度先增大后下降的现象可解释为聚合物包裹部分有序排

列的氮化硼分子, 使复合材料相当于产生部分结晶化的作用。同时, 聚合物和填料端羟基与环氧基可形成化学交联点或吸附于氮化硼表面的羟基形成物理交联点, 使三相复合材料的力学性能有所提高。但随着填料的进一步添加, 由于填料的刚性大, 且在大量添加的情况下容易出现团聚等缺陷, 从而致使材料的力学性能下降。

4 与国内外相似研究对比分析

2004 年, 日本 Ochi 等^[22]对一系列液晶环氧树脂的热学性能、机械性能等进行了探究。Harada 等^[23-24]合成了一种含有三联苯结构的液晶环氧树脂并对其结构进行了表征, 该液晶环氧树脂较传统的环氧树脂具有较好的耐酸性和断裂韧性; 同时, 使用液晶环氧树脂和芳香族二胺类固化剂的固化反应, 研究了液晶环氧树脂在不同固化温度下形成介晶区域的大小, 并对固化后产物的热性能和断裂韧性进行了分析; 此外, 还采用液晶环氧树脂和氮化硼制备复合材料, 通过不同的固化温度得到介晶尺寸大小不同的介晶区域,

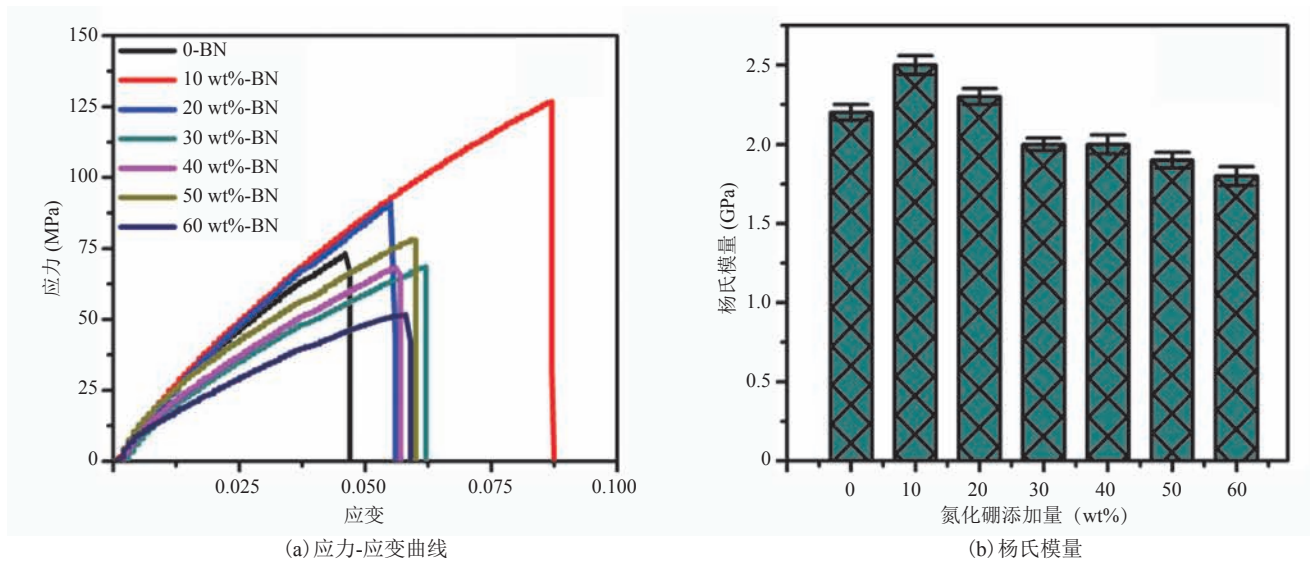


图 6 氮化硼添加量为 0~60 wt% 时的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的力学性能曲线图

Fig. 6 0-60 wt% boron nitride addition amount of liquid crystal epoxy resin/boron nitride nanosheet/glass fiber three-phase composite material mechanical properties curve

从而提高固化物的导热性。Yamamoto 等^[25]选用了一种含有介晶基元的固化剂，在与液晶环氧树脂固化过程中，通过增加液晶微区的方式提高固化物交联网络的规整性。但以上研究结果表明，两相液晶环氧树脂复合材料功能性过于单一，且有关三相材料的研究仍较少。本文通过控制三相复合材料中增强材料玻璃纤维布含量不变，添加不同含量导热填料来研究填料含量的不同对所制备出的液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的性能，如微观结构、机械性能、介电性能和热力学性能等的影响。本文结果显示，所制备的三相复合材料具有较高的导热系数，良好的热稳定性、介电性能和力学性能，满足电子封装材料的要求。最重要的是，本研究制备出的三相复合材料具有制备工艺简单、成本低廉、对环境友好等优点，可在电子封装相关领域具有广阔的应用前景。

5 结 论

本研究以液晶环氧树脂 DGE-BHBTMBP 为

基体，采用固化剂 DDS，制备出了液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料，并通过控制三相复合材料中增强材料玻璃纤维布含量不变，添加不同含量导热填料氮化硼来研究填料含量的不同对三相复合材料的导热性能、热性能、介电性能和力学性能的影响。研究表明：

(1) 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的厚度和平面方向导热性能随着填料的增加而增大，并在氮化硼片添加量达到 50 wt% 时达到最大值，厚度方向和平面方向分别为 1.6 W/(m·K)、5.85 W/(m·K)。

(2) 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料具有较高的玻璃化转变温度(高于 180 °C)和优异的热稳定性(热分解温度高于 365 °C)。

(3) 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的介电常数和介电损耗随着频率的增加而减少，但随着填料量的增加而变大，介电常数和介电损耗分别为 5.0~6.0、0.04~0.06。

(4) 液晶环氧树脂/氮化硼片/玻璃纤维三相复合材料的拉伸强度和杨氏模量随着填料量的增加先升高后下降，杨氏模量最大值为 2.5 GPa。

参 考 文 献

- [1] Huang X, Liu Y, Hwang SW, et al. Biodegradable materials for multilayer transient printed circuit boards [J]. *Advanced Materials*, 2014, 26(43): 7371-7377.
- [2] Najafabadi AH, Tamayol A, Annabi N, et al. Biodegradable nanofibrous polymeric substrates for generating elastic and flexible electronics [J]. *Advanced Materials*, 2014, 26(33): 5823-5830.
- [3] Daniele MA, Knight AJ, Roberts SA, et al. Sweet substrate: a polysaccharide nanocomposite for conformal electronic decals [J]. *Advanced Materials*, 2014, 27(9): 1600-1606.
- [4] 曾小亮. 功能化有机基板材料的制备、结构表征及其性能研究 [D]. 中国科学院大学深圳先进技术学院, 2017.
- [5] Arabgol Z, Vidaller MV, Assadi H, et al. Influence of thermal properties and temperature of substrate on the quality of cold-sprayed deposits [J]. *Acta Materialia*, 2017, 127.
- [6] Cheng XY, Yokozeki T, Yamamoto M, et al. The decoupling electrical and thermal conductivity of fullerene/polyaniline hybrids reinforced polymer composites [J]. *Composites Science & Technology*, 2017, 144: 160-168.
- [7] Chung SL, Lin JS. Thermal conductivity of epoxy resin composites filled with combustion-synthesized AlN powder [J]. *Molecules*, 2017, 21(5): 670-677.
- [8] Yeo H, Islam AM, You NH, et al. Characteristic correlation between liquid crystalline epoxy and alumina filler on thermal conducting properties [J]. *Composites Science & Technology*, 2017, 141: 99-105.
- [9] Kwon YJ, Kim Y, Jeon H, et al. Graphene/carbon nanotube hybrid as a multi-functional interfacial reinforcement for carbon fiber-reinforced composites [J]. *Composites Part B: Engineering*, 2017, 122: 23-30.
- [10] Giang T, Kim J. Effect of liquid-crystalline epoxy backbone structure on thermal conductivity of epoxy-alumina composites [J]. *Journal of Electronic Materials*, 2016, 46(1): 1-10.
- [11] Chen F, Cong Y, Zhang B. Synthesis and characterization of liquid crystalline epoxy and copolymerisation with a non-mesomorphic epoxy resin [J]. *Liquid Crystals*, 2016, 43(8): 1-10.
- [12] Zhong Z, Wingert MC, Strzalka J, et al. Structure-induced enhancement of thermal conductivities in electrospun polymer nanofibers [J]. *Nanoscale*, 2014, 6(14): 8283-8291.
- [13] Zhou T, Wang X, Cheng P, et al. Improving the thermal conductivity of epoxy resin by the addition of a mixture of graphite nanoplatelets and silicon carbide microparticles [J]. *Express Polymer Letters*, 2013, 7(7): 585-594.
- [14] Zhang K, Zhang Y, Wang SR. Effectively decoupling electrical and thermal conductivity of polymer composites [J]. *Carbon*, 2013, 65: 105-111.
- [15] Harada M, Watanabe Y, Tanaka Y, et al. Thermal properties and fracture toughness of a liquid-crystalline epoxy resin cured with an aromatic diamine crosslinker having a mesogenic group [J]. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, 2006, 44(17): 2486-2494.
- [16] 郭健. 浅析差示扫描量热法测定材料的比热容 [J]. *太原科技*, 2007 (10): 19-20.
- [17] Kim GH, Lee D, Shanker A, et al. High thermal conductivity in amorphous polymer blends by engineered interchain interactions [J]. *Nature Materials*, 2015, 14(3): 295-300.
- [18] Li YX, Lu XF, Liu XC, et al. Ultra-low dielectric performance of polymer electrospun nanofiber mats [J]. *Applied Physics A*, 2010, 100(1): 207-212.
- [19] Liu XB, Mi J, Jiang LX, et al. A novel liquid crystalline epoxy and copolymers [J]. *Engineering Plastics Application*, 1994, 22(5): 3-7.
- [20] 祖群. 高性能玻璃纤维研究 [J]. *玻璃纤维*, 2012(5): 16-23.
- [21] Carfagna C, Amendola E, Giamberini M, et al. Liquid crystalline epoxy resins in polymer dispersed liquid crystal composites [J]. *Polymer International*, 1997, 44(4): 465-473.
- [22] Ochi M, Hori D, Watanabe Y, et al. Bonding properties of epoxy resins containing two mesogenic groups [J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2004, 92(6): 3721-3729.
- [23] Harada M, Aoyama K, Ochi M. Fracture mechanism of liquid-crystalline epoxy resin systems with different phase structures [J]. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, 2004, 42(22): 4044-4052.
- [24] Harada M, Aoyama K, Ochi M. Influence of the loading rate on liquid-crystalline epoxy resin systems [J]. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, 2005, 43(11): 1296-1302.
- [25] Yamamoto H, Fujita A, Harada M, et al. Synthesis and characterization of novel liquid crystalline epoxy resin with low melting point [J]. *Molecular Crystals and Liquid Crystals*, 2014, 588(1): 41-50.