颗粒补强橡胶复合材料导热性能的模拟研究

张晓光，冀英杰，何　燕，马连湘
（青岛科技大学 机电工程学院，山东 青岛　266061）

摘要：基于 Ansys Workbench 稳态热分析模块，针对颗粒形状、填充体积分数、圆柱体颗粒取向及长径比等填充情况，对复合材料的导热性能进行模拟研究。结果表明，复合材料的热导率随颗粒填充体积分数的增大而增大，填充圆柱体颗粒复合材料的热导率大于填充球形等颗粒复合材料，圆柱体颗粒取向变化对复合材料导热性能的影响明显，而且其热导率随长径比的增大而增大。

关键词：橡胶；颗粒；热导率；补强
中图分类号：TQ330.6^{+}7　　**文献标志码**：A　　**文章编号**：1000-890X(2013)09-0533-04

相对金属材料而言，复合材料具有优良的耐腐蚀性能和力学性能，因而人们逐渐在一些化工、污水处理等领域用复合材料替代传统金属材料，但大多数复合材料热导率较低[1]，选用高导热填料进行填充改性是制备高导热复合材料的有效途径，而橡胶与塑料和纤维相比，具有高伸缩性和弹性，更多用于动态条件（轮胎、传动带、减震垫等），解决动态生热问题也成为研究的重要方向之一。

近年来，对提高橡胶复合材料导热性能的研究主要以实验为主。林桂等[2]研究了片状石墨、碳短纤维及三氧化二铝粉末等与天然橡胶复合的填充型导热橡胶；周文英等[3]以微米和纳米尺寸的三氧化二铝作导热填料制备了导热绝缘高温硅橡胶；崔琪等[4]研究了炭黑用量及硫化对橡胶热导率的影响。梁基照等[5]、解挺等[6]也做过对填充型聚合物复合材料导热性能的模拟研究，但没有考虑填充颗粒形状对热导率的影响。

本工作针对颗粒形状、体积分数、圆柱体颗粒取向及长径比等填充情况，对聚合物复合材料的导热性能进行数值模拟研究，以期对复合材料热导率进行预测，有效降低试验成本。

1　数值模拟原理

对于稳态热分析，利用傅里叶公式可求得复合材料的热导率（λ）：

$$dQ = -\lambda \frac{\partial T}{\partial n} dA$$

式中，Q 为热量，T 为热力学温度，n 为热流方向，A 为传热有效面积。

均匀化理论是 20 世纪 70 年代由法国科学家提出并应用到具有周期性结构的材料中，是研究复合材料等效性能及材料微观结构拓扑优化的常用方法，80 年代该理论得到进一步发展，形成一套严格的数学理论。该方法用均质的宏观结构和非均质的具有周期性分布的细观结构描述原结构，既能从细观尺度分析复合材料的等效性能和变形，又能从宏观尺度分析结构的响应[7]。

对于填充颗粒的橡胶复合材料，其整体具有周期性分布的性质，只需选取一个代表性体积单元便可代表总体。根据均匀化理论，选取等效体积单元 RVE（Representative Volume Element）[8]，进而得到复合材料的均匀化参数。对于颗粒填充体系进行导热模拟研究，选择三维模型可提高模拟精确度。填充橡胶复合材料传热过程等效体积单元的物理模型如图 1 所示。

热导率是表征材料导热性能的一种物性参数，传热模型的加载温度及边界条件的选取对模拟结果不应有明显的影响，只要复合材料中的聚合物及填料粒子的热导率保持恒定，通过改变加载温度判断模拟结果是否一致，即可证明所建立模型的合理性。

基金项目：国家自然科学基金资助项目（51076070）

作者简介：张晓光（1979—），男，山东莱阳人，青岛科技大学副教授，博士，主要从事复合材料热物性研究工作。

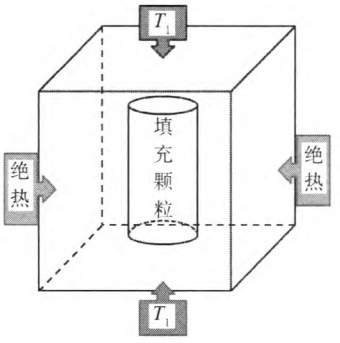


图 1 等效体积单元(假定填充圆柱体颗粒)

模型的可靠性与合理性决定数值模拟结果的可信度。为了验证模型的可靠性与合理性,选择球形体的单胞模型进行模拟,模拟结果与参考值[9]一致,证明所建立模型是合理的。

2 计算结果与讨论

2.1 颗粒形状

对不同形状颗粒填充聚合物复合材料导热进行模拟,温度分布如图 2 所示。

球体、正六面体、正四面体和圆柱体(长径比 3∶1)颗粒填充聚合物复合材料热导率的数值模拟结果分别为 0.237 105,0.244 855,0.264 125 和 0.334 040 $W \cdot (m \cdot K)^{-1}$。由此可见,在填充体积分数相同的情况下,不同形状颗粒对复合材料热导率的影响是很明显的,影响从小到大的次序为球体、正六面体、正四面体、圆柱体。

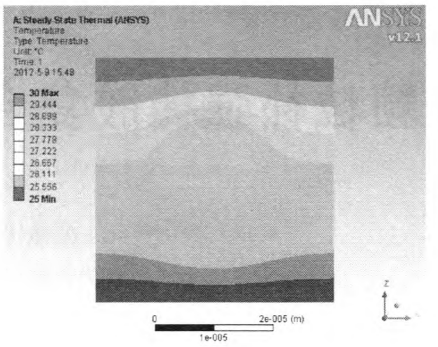
2.2 填充体积分数

颗粒填充体积分数对复合材料导热性能的影响如图 3 所示。

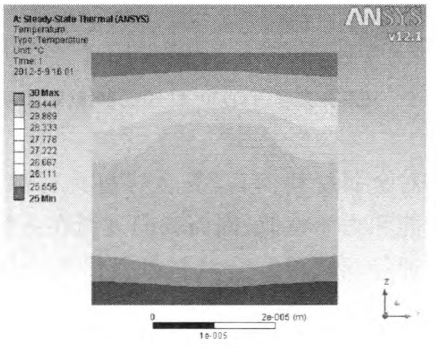
从图 3 可以看出,复合材料热导率随颗粒体积分数增大而增大。在低填充体积分数下,圆柱体颗粒对热导率的影响是最明显的。而在高填充体积分数下,圆柱体和正四面体受所选晶胞边长条件的限制,球体和正六面体则不受限制,在填充体积分数小于 0.4 时,填充正六面体颗粒的复合材料的热导率大于填充球体颗粒的复合材料,而大于 0.4 后二者则相反。

2.3 圆柱体颗粒取向

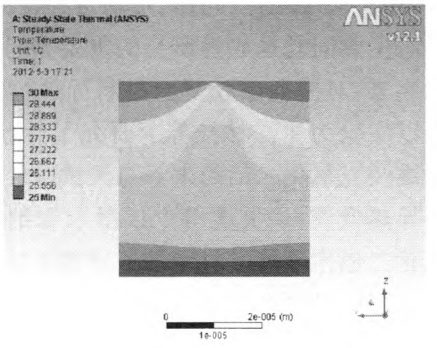
选取圆柱体长径比为 3∶1,填充体积分数为 0.06,对圆柱体颗粒取向的影响进行数值模拟。取向变化包含以 X 和 Z 轴为中心轴的旋转,如图 4



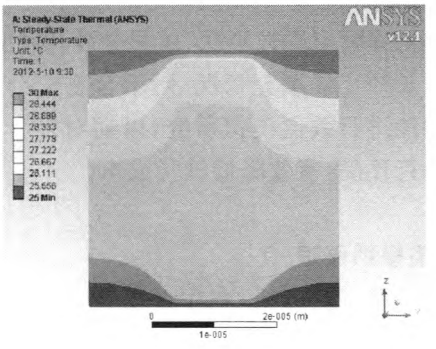
(a)球体



(b)正六面体

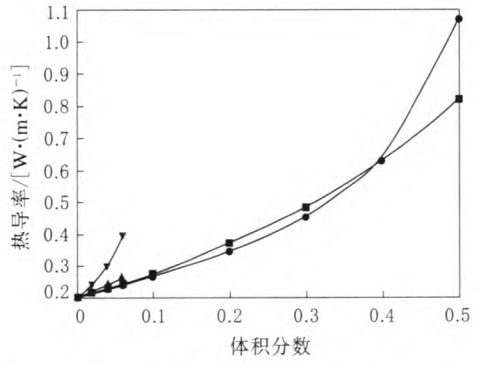


(c)正四面体



(d)圆柱体(长径比 3∶1)

图 2 不同形状颗粒的晶胞温度分布



■—正六面体；●—球体；▲—正四面体；▼—圆柱体。

图 3　颗粒填充体积分数对复合材料导热性能的影响

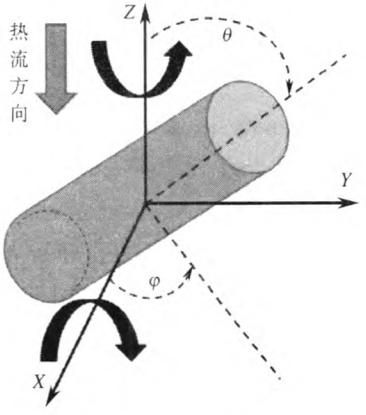


图 4　圆柱体颗粒取向变化示意

所示。

在 $\varphi=0°$、θ 为 0,15,30,45,60,75 和 90°(以 X 轴为中心轴旋转)时,复合材料的热导率分别为 0.426 745,0.404 815,0.348 135,0.294 395,0.257 430,0.236 070 和 0.229 070 $W\cdot(m\cdot K)^{-1}$。

在 $\theta=45°$、φ 为 0,15,30 和 45°(以 Z 轴为中心轴旋转)时,复合材料的热导率分别为 0.294 395,0.294 485,0.294 695 和 0.294 810 $W\cdot(m\cdot K)^{-1}$。

由此可见:圆柱体颗粒在以 X 轴为中心轴旋转时,越偏离 Z 轴,热导率越小,而且从 0°旋转到 90°热导率值变化明显;圆柱体颗粒在以 Z 轴为中心轴旋转时,从 0°到 45°有所增大,但变化不大。此结论与导热模型[10]的结论是一致的。

2.4　圆柱体颗粒长径比

选取填充体积分数为 0.06,θ 和 φ 均为 0°,对圆柱体颗粒长径比的影响进行模拟。模拟结果如图 5 所示。

从图 5 可以看出,颗粒长径比对导热性能的影响是比较大的。对于相同体积分数、相同取向的圆柱体颗粒,热导率随长径比增大而增大,在长径比为 3.618 处(长度与晶胞边长相等)热导率达到最大值,因为圆柱体颗粒形成导热通道,大部分热流不会经过复合材料基体,而是直接通过热导率高的圆柱体颗粒进行传导。

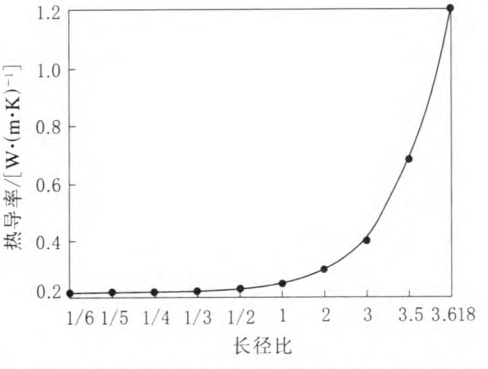


图 5　圆柱体颗粒长径比对复合材料导热性能的影响

3　结论

(1)用高导热颗粒填充聚合物,可制备出导热性能良好的聚合物复合材料。

(2)采用有限元分析软件可以对填充型复合材料的热导率进行数值模拟,能够直观地看到填充型复合材料的温度分布及热流传递过程,并得出热导率的模拟值。

(3)复合材料的热导率随颗粒填充体积分数的增大而增大,低填充分数下,填充圆柱体颗粒复合材料的热导率高于填充球形等颗粒的复合材料,其取向变化对导热性能的影响明显,而且热导率随长径比的增大而增大;填充体积分数低于 0.4 时,填充球形颗粒复合材料的热导率低于填充正六面体颗粒的复合材料,高于 0.4 后则相反。

颗粒填充聚合物复合材料热导率的有限元模拟可用于复合材料热导率的预测,有效降低试验成本,对于导热复合材料的设计加工具有一定的指导意义。

参考文献:

[1] 刘汉,吴宏武. 填充型导热高分子复合材料研究进展[J]. 塑料工业,2011,39(4):10-13.

[2] 林桂,钱燕超,张鹏,等. 纳米二氧化锌填充橡胶复合材料的分散结构与性能[J]. 合成橡胶工业,2005,28(2):98-104.

[3] 周文英,齐暑华,涂春潮. 氧化铝对导热硅橡胶性能的影响

[J]. 合成橡胶工业,2006,29(6):462-465.
[4] 崔琪,张方良,何燕,等. 炭黑用量及硫化对橡胶导热系数的影响[J]. 世界橡胶工业,2008,35(2):17-19.
[5] 梁基照,刘冠生. 无机粒子填充聚合物复合材料传热模型及有限元模拟[J]. 特种橡胶制品,2006,27(5):25-38.
[6] 解挺,林子钧,陈刚,等. Cu 粉含量对 PTFE 基复合材料导热性能影响的数值分析[J]. 金属功能材料,2010,17(2):52-56.
[7] Hassani B, Hinton E. A Review of Homogenization and Topology optimization. I. Homogenization Theory for Media with Periodic Structure[J]. Computers & Structures, 1998, 69(6): 707-717.
[8] Gambarota L, Lagomarsino S. Damage Models for the Seismic Response of Brick Masonry Shear Walls. Part Ⅰ: The Mortar Joint Model and Its Applications[J]. Earthquake Engineering and Structural Dynamics, 1997, 26(4): 423-439.
[9] 邱玉琳,梁基照. LDPE/石墨复合材料导热系数模拟与实测值的比较[J]. 塑料科技,2009,37(8):38-41.
[10] Agari Y, Uno T. Estimation on Thermal Conductivities of Filled Polymers[J]. Journal of Applied Polymer Science, 1986, 32(7): 5705-5712.

收稿日期:2013-03-11

Numerical Investigation of Thermal Conductivity of Rubber Composites Filled with Particulates

ZHANG Xiao-guang, JI Ying-jie, HE Yan, MA Lian-xiang
(Qingdao University of Science & Technology, Qingdao 266061, China)

Abstract: Based on the Ansys Workbench steady state thermal analysis module, the thermal conductivity of rubber composites filled with particulates was simulated and the effects of the shape of particulates, volume fraction of loading, orientation and aspect ratio of fillers were studied. The results showed that the thermal conductivity increased with the increase of the volume fraction of particulates and the shape of the filler particles had great influence on the thermal conductivity. The thermal conductivity of composites filled with cylindrical particles was higher than that of composites filled with spherical particles, and the thermal conductivity increased with the increase of the aspect ratio of the cylindrical particles. Moreover, the orientation of cylindrical particles also influenced the thermal conductivity significantly.

Key words: rubber; particulate; thermal conductivity; reinforcement

化工橡胶行业技术转移中心成立

中图分类号:TQ33 **文献标志码**:D

2013 年 7 月 11 日,化工橡胶行业技术转移中心揭牌暨首届全国大学生高分子材料创新创业大赛发布会在青岛举行,国内橡胶领域首个技术转移中心正式落户橡胶谷。中国石油和化学工业联合会副会长赵俊贵、中国化工教育协会会长熊传勤、中国技术交易所副总裁李中华等出席本次活动。

活动现场,国家化工行业生产力促进中心、中国技术交易所与橡胶谷三方签署了化工橡胶行业技术转移中心共建协议书,北京化工大学、山东大学等 6 所高校同时就技术转让与橡胶谷达成战略合作。据悉,化工橡胶行业技术转移中心由化工行业生产力促进中心、中国技术交易所、橡胶谷三方发起,由橡胶谷生产力促进中心承接建设和运营,将重点拓宽橡胶行业产学研合作的发展路径,发现优秀项目、技术与人才,建立科研成果转化、创新人才培养、市场前沿应用等多位一体的产学研机制,帮助高校和科研院所快速将科研成果转化到企业生产中,实现化工橡胶行业产学研用的快速有效融合。

化工橡胶行业技术转移中心将致力于组织行业内权威专家资源,进行科研成果鉴定与转化、能力交易、申报评奖、行业技术与管理培训、行业及企业的科技发展规划、科技政策解读等业务。作为化工橡胶技术转移中心的重要项目,首届全国大学生高分子材料创新创业大赛的发布会和授旗仪式也同期举行。大赛由中国石油和化学工业联合会、中国化工教育协会和青岛科技局主办,橡胶谷承办,青岛科技大学等高校协办,征集作品涵盖橡胶、塑料、涂料、胶粘剂、功能材料等高分子材料领域。

(摘自《中国化工报》,2013-07-15)