

文章编号:1000-582X(2011)06-087-05

不同形状颗粒弥散复合材料的等效导热系数

宋思洪^{1,2},廖强¹,沈卫东²

(1. 重庆大学 工程热物理研究所,重庆 400044;2. 重庆通信学院 军事电力工程系,重庆 400035)

摘要:根据最小热阻力法和比等效导热系数法对不同形状颗粒弥散复合材料的等效导热系数进行预测。采用以颗粒在传热方向上的特征长度为边长的立方体体积与实际颗粒体积之比作为形状因子,对不同颗粒形状等效为立方体时的无量纲相对特征长度进行修正,基于形状因子进一步推导了适用于不同形状颗粒弥散复合材料在中低体积分数情况的等效导热系数通用计算公式。此通用计算公式与实验值及其它模型计算值吻合较好,对于导热增强型复合材料,体积分数一定时,其等效导热系数与颗粒形状因子呈正比,增加颗粒在传热方向上的尺寸能有效提高复合材料的导热性能。

关键词:复合材料;形状因子;导热系数

中图分类号:TB333

文献标志码:A

Effective thermal conductivity of composites filled with different shape particles

SONG Si-hong^{1,2}, LIAO Qiang¹, SHEN Wei-dong²

(1. Institute of Engineering Thermophysics, Chongqing University, Chongqing 400044, P. R. China;
2. Military Electricity Engineering Department, Chongqing Communication College, Chongqing 400035, P. R. China)

Abstract: Based on the laws of the minimal thermal resistance and the specific effective thermal conductivity, this paper predicts the effective thermal conductivity of composites filled with different shape particles. When the particle shape is equivalent to the cube which used character length of particle in the direction of heat transfer as edge length, the dimensionless relative character length is amended using the volume ratio of the cube and factual particle as shape factor. Based on the shape factor, universal expression of the effective thermal conductivity is developed, which is adaptive to the composites filled with different shape particles and its volume fraction is medium and lower. The calculation results of the universal expression accord well with that of experiments and other models, the effective thermal conductivity increases in direct proportion to shape factors for heat conduction enhanced composites when volume fraction is invariable, and the thermal conductivity of composites can be enhanced by increasing the dimension of particle in heat transfer direction.

Key words: composites; shape factor; thermal conductivity

复合材料由于具有轻质高强、结构造型以及设计自由等特点,在航空航天、军事、能源、电子、化工等领域得到了广泛的应用^[1]。对于以热障或热导为目的的功能型复合材料,其等效导热系数与各组份的导热

系数、弥散颗粒的空间几何形状和体积分数等有关。等效导热系数的定量确定对复合材料设计和制备、性能研究至关重要,因此寻求复合材料导热系数的预测方法一直受到广泛的关注^[2]。

收稿日期:2010-12-07

基金项目:“十一五”信息对抗国防预研项目(41101050203)

作者简介:宋思洪(1978-),男,重庆大学博士研究生,主要从事材料热特性研究,(E-mail)songsh0915@163.com。

廖强(联系人),男,重庆大学教授,博士生导师,(Tel)023-65102474;(E-mail) lqzx@cqu.edu.cn。

目前,文献中预测复合材料等效导热系数的模型和方法有很多,主要包括早期的 Maxwell、Bruggeman 模型和现在应用较多的 Agari 模型以及最小热阻力法、热阻网络法、傅里叶定律计算法、均匀化法、逾渗理论法、分形理论法等^[3-14]。复合材料等效导热系数的预测是一个非常复杂的过程,对于不同情况须考虑的因素不同,应选择不同的模型和方法。最小热阻力法比较简单,不考虑填充粒子之间的相互作用,适合中低体积分数复合材料等效导热系数的预测。李明伟^[7],梁基照^[8]等根据最小热阻力法和比等效导热系数法对球形颗粒填充复合材料的等效导热系数进行估算,其结果与实验值比较吻合;陈则韶等^[9]藉最小热阻力法则和比等效导热系数法则,提出了用求复合材料的等效热阻及其限区来确定该复合材料的等效导热系数的方法,导出了推算复合材料等效导热系数的普遍式,但对于不同形状的颗粒,如长方体和球体,仍需采用一些具体式,实质上并未得到计算不同形状颗粒弥散复合材料等效导热系数的通用公式。根据最小热阻力法和比等效导热系数法对不同形状颗粒弥散型复合材料的等效导热系数进行预测,推导了基于颗粒形状因子的等效导热系数通用计算公式。

1 颗粒弥散复合材料导热的理论分析

1.1 球形颗粒弥散时的数学模型

根据最小热阻法则和等效导热系数法则,只要复合材料的单元体与总体有相等的比等效热阻,不论单元体尺寸大小,在只考虑热传导时,这种单元体与总体的等效导热系数相等^[9]。因此,为简化分析,将整个复合材料考虑为一系列微小单元(立方体)连接而成,每个单元由基体材料包含着一个分散相单体,由于一个单元相对于材料整体来说是很小的,因此,可认为温度在单元内沿热流方向呈线性分布^[15-16],以此为基础对单元体(如图 1 所示)进行等效导热系数计算。

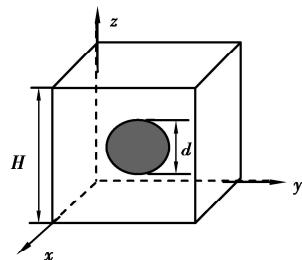


图 1 单元的三维物理模型

首先以三维对称的球形颗粒作为分散相,由于只

考虑单方向上的传热,因此可简化成二维,如图 2 所示,其中第 1、3 部分只含连续相基体,第 2 部分含有基体和球形颗粒,热量沿 x 方向传递。根据热阻串联,将 3 部分的热阻相加就可以得到整个单元的等效热阻,进而求出单元的等效导热系数。

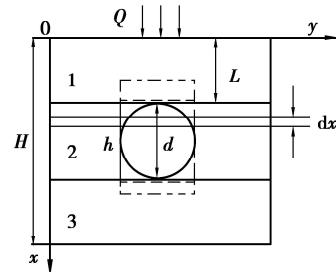


图 2 传热过程的单元分析

$$\text{第 1、3 部分: } \lambda_1 = \lambda_3 = \lambda_b。 \quad (1)$$

第 2 部分:利用微分概念,取厚度微元为 dx ,根据傅立叶定律可推得

$$\lambda_2 = \frac{Q_b + Q_p}{\frac{dT}{dx} \cdot A} = \frac{\lambda_b A_b + \lambda_p A_p}{A} = \lambda_b \frac{A_b}{A} + \lambda_p \frac{A_p}{A}, \quad (2)$$

式中: Q 代表热量; T 代表温度; A 代表横截面积; λ 代表导热系数; 下标 b, p 分别代表基体连续相和颗粒分散相。由于温度的线性分布,故先求得各部分的平均导热系数 $\bar{\lambda}$ 和等效热阻^[15-16]。

$$\text{第 1、3 部分: } \bar{\lambda}_1 = \bar{\lambda}_3 = \lambda_b, \quad (3)$$

$$R_1 = R_3 = \frac{L}{\lambda_b A}. \quad (4)$$

第 2 部分:

$$\begin{aligned} \bar{\lambda}_2 &= \frac{1}{d} \int_0^d \lambda_2 dx = \\ &= \frac{1}{d} \int_0^d (\lambda_b \frac{A_b}{A} + \lambda_p \frac{A_p}{A}) dx = \\ &= \frac{1}{dA} (\lambda_b V_b + \lambda_p V_p), \end{aligned} \quad (5)$$

$$R_2 = \frac{d}{\bar{\lambda}_2 A} = \frac{d^2}{\lambda_b V_b + \lambda_p V_p}. \quad (6)$$

由热阻串联定律,复合材料等效导热系数 λ_{eff} 为

$$\lambda_{eff} = \frac{H}{(R_1 + R_2 + R_3)A} = \frac{H}{(\frac{2L}{\lambda_b A} + \frac{d^2}{\lambda_b V_b + \lambda_p V_p})A}, \quad (7)$$

式中: L 为单元体第 1、3 部分厚度; V_b, V_p 分别为单元第 2 部分中基体材料、分散相的体积。根据几何关系 $A = H^2, V = H^3, L = \frac{1}{2}(H - d)$ 及颗粒相体积分

数 $\varphi_p = \frac{V_p}{V} = \frac{\pi}{6} \left(\frac{d}{H} \right)^3$, 代入式(7)得出球形颗粒弥散

时复合材料的等效导热系数

$$\lambda_{\text{eff}}^{-1} = \frac{1 - \frac{d}{H}}{\lambda_b} + \frac{\left(\frac{d}{H} \right)^2}{\lambda_b \frac{V_b}{H^3} + \lambda_p \frac{V_p}{H^3}} = \frac{1 - \left(\frac{6\varphi_p}{\pi} \right)^{\frac{1}{3}}}{\lambda_b} + \frac{\left(\frac{6\varphi_p}{\pi} \right)^{\frac{2}{3}}}{\lambda_b \left[\left(\frac{6\varphi_p}{\pi} \right)^{\frac{1}{3}} - \varphi_p \right] + \lambda_p \varphi_p}。 \quad (8)$$

1.2 形状因子

若图 2 中的分散相为其它不同形状时, 同理可推出与式(8)具有相同形式的复合材料等效导热系数计算公式

$$\lambda_{\text{eff}}^{-1} = \frac{1 - (s\varphi_b)^{\frac{1}{3}}}{\lambda_b} + \frac{(s\varphi_p)^{\frac{2}{3}}}{\lambda_b [(s\varphi_p)^{\frac{1}{3}} - \varphi_p] + \lambda_p \varphi_p}, \quad (9)$$

式中: s 为形状因子, 与分散相颗粒的形状有关, 对于截面为圆形的球体: $s = \frac{6}{\pi}$; 截面为正方形的立方

体: $s = 1$; 截面为圆形的径向导热短圆柱: $s = \frac{4}{\pi m}$ (m 为长径比)。截面为长方形的轴向导热短圆柱: $s = \frac{4m^2}{\pi}$ 。

从式(8)可以看出, s 出现在包含有 $\frac{d}{H}$ 的项, 即可看成是对颗粒的无量纲特征长度 $\frac{d}{H}$ (颗粒在传热方向上的长度与单元体长度之比)的修正。由此可知, 含不同形状颗粒的复合材料之间的有效导热系数差异主要在于分散相颗粒的传热方向相对特征尺寸 $\frac{d}{H}$, 以立方体颗粒为基础, 在立方体颗粒的基础上作形状修正, 当把实际颗粒等效为边长为 d 的立方体时, 由于体积发生变化, 则

$$\varphi'_p = \frac{V_c}{V_p} \cdot \frac{V_p}{V} = s\varphi_p, s = \frac{V_c}{V_p}, \quad (10)$$

式中: φ'_p 为立方体颗粒的体积分数; V_c 为等效立方体体积; V_p 为实际颗粒体积。形状因子 s 即为: 以颗粒在传热方向的特征长度为边长的立方体体积与实际颗粒体积之比。据此推出任意形状颗粒的形状因子, 从而计算出复合材料等效导热系数。

1.3 基于形状因子的通用等效导热系数

对于三维对称的颗粒, 如立方体、球体, 可采用式(9)直接计算。而对于非三维对称的短圆柱, 椭球等颗粒, 由于在基体中随机分布, 截面可等效成在 x , y , z 方向上的投影, 根据概率统计, 可认为在平行于 x , y , z 3 个方向上分布的颗粒数量相等, 即

$$\varphi_{p,1} = \varphi_{p,2} = \varphi_{p,3} = \frac{\varphi_p}{3}, \quad (11)$$

式中 $\varphi_{p,1}, \varphi_{p,2}, \varphi_{p,3}$ 为平行于 x, y, z 3 个方向上分布颗粒的体积分数, 由于颗粒的非对称性, 在各个方向上的截面形状不同, 引入 3 个方向上的形状因子 s_1, s_2, s_3 , 则适合于各种形状颗粒弥散复合材料的通用等效导热系数计算公式为

$$\lambda_{\text{eff}}^{-1} = \frac{1 - \left(\sum_{i=1}^3 s_i \varphi_{p,i} \right)^{\frac{1}{3}}}{\lambda_b} + \frac{\left(\sum_{i=1}^3 s_i \varphi_{p,i} \right)^{\frac{2}{3}}}{\lambda_b \left[\left(\sum_{i=1}^3 s_i \varphi_{p,i} \right)^{\frac{1}{3}} - \varphi_p \right] + \lambda_p \varphi_p}。 \quad (12)$$

2 结果与讨论

以聚丙烯(PP)树脂($\lambda = 0.19 \text{ W/m} \cdot \text{K}$)为基体, 球形石墨颗粒($\lambda = 120 \text{ W/m} \cdot \text{K}$)为弥散相, 不同体积分数时复合材料等效导热系数的文中模型计算值与文献[17]中的实验值及 Maxwell 模型计算值结果比较如图 3 所示。

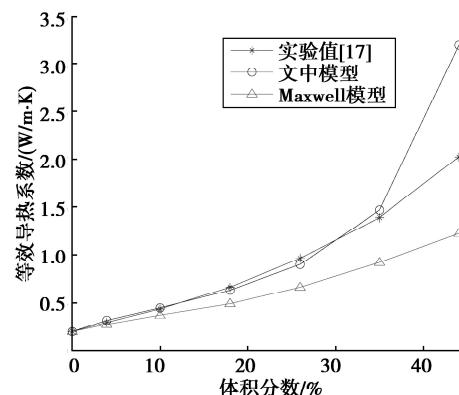


图 3 球形石墨/PP 复合材料 λ_{eff} 与 φ_p 的关系曲线

从图 3 可以看出, 文中模型比 Maxwell 模型更接近于实验值, 适用范围更广。Maxwell 模型是假设粒子以“孤岛”的形式分布, 相互间无相互作用, 而实际上当体积分数较大时, 粒子可能连接形成导热链或导热网络, 致使实际导热系数比 Maxwell 模型预测值高。文中模型在 $\varphi_p > 35\%$ 时, 模型值反而高于实验值, 原因可能是当体积分数较高时, 模型未考虑颗粒与基体间界面热阻也随之变大的影响以及模型的二维简化、实验测试本身存在误差等所造成的。并且当 $\varphi_p > 52\%$ 时 λ_{eff} 出现负值, 此时连续相和分散相互换, 文中物理模型与实际分布情况有较大差异而不再适用。模型在 $\varphi_p < 35\%$, 即 $\frac{d}{H} < 0.87$ 的情况下, 模型值与实验值吻合较好, 其最大误差不超过

7%。由此可见,模型适用于 $\varphi_p < 35\%$ 的中低填充情况,而对于高填充情况,则有较大误差。由于考虑到复合材料力学性能等因素,大多数实际复合材料填充的体积分数一般在 40% 以内,与文中模型的适用范围基本一致。

以酚醛树脂($\lambda = 0.2 \text{ W/m} \cdot \text{K}$)为基体,短圆柱铝颗粒($\lambda = 203 \text{ W/m} \cdot \text{K}$, $m=1$)为弥散相,不同体积分数时复合材料等效导热系数的文中模型计算值与 Hamilton-Crossor 模型^[18] 计算值比较如图 4 所示。

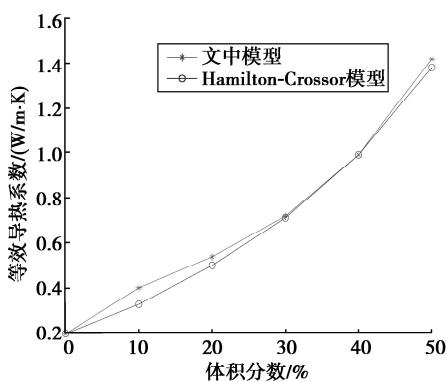


图 4 短圆柱铝/酚醛树脂复合材料 λ_{eff} 与 φ_p 的关系曲线

从图 4 可以看出,分散颗粒为短圆柱形时,文中模型与 Hamilton-Crossor 模型的预测值基本一致,因此,文中模型对不同形状颗粒弥散复合材料等效导热系数的预测方法是有效的,具有一定的指导作用。

以酚醛树脂为基体,铝颗粒为弥散相,在 $\varphi_p = 20\%$ 时,等效导热系数随形状因子的变化如图 5 所示。

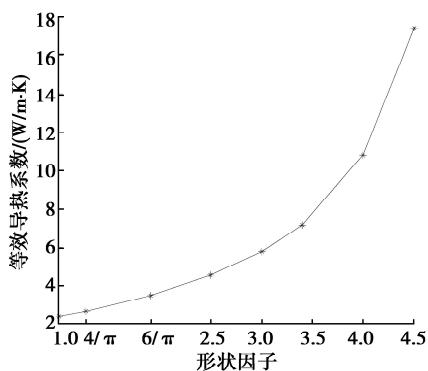


图 5 等效导热系数随形状因子变化的关系曲线

从图 5 可以看出,对于导热增强型复合材料, φ_p 一定时,其等效导热系数与颗粒形状因子呈正比。

形状因子越大,也即颗粒在传热方向上的相对特征尺寸 $\frac{d}{H}$ 越大,颗粒在传热方向上更易形成导热链或导热网络,等效导热系数就越高。因此,对于片状、短纤维等非对称填充物,为提高所填充复合材料的导热性能,应根据填充物的形态结构,在合适的工艺条件下让填充物在基体材料中形成有效的导热通路,这是制备填充型导热复合材料的关键,也是下一步研究的一个重要方向。

3 结 论

1) 不同颗粒形状对复合材料等效导热系数的影响可采用形状因子进行表示,由于实际颗粒形状看成立方体时因体积变化而对颗粒无量纲相对特征长度进行的修正,形状因子可表示为:以颗粒在传热方向的特征长度为边长的立方体体积与实际颗粒体积之比;对于非三维对称的颗粒,在各个方向上的形状因子有所不同。

2) 基于形状因子的通用等效导热系数计算公式适用于球体、短圆柱体、立方体以及片状等颗粒弥散的复合材料,在中低体积分数($< 35\%$)的情况下有较高精度,可以对大多数实际复合材料的等效导热系数进行预测。

3) 对于导热增强型复合材料,体积分数一定时,等效导热系数与颗粒形状因子呈正比,增加颗粒在传热方向上的尺寸能有效提高复合材料的导热性能。

参 考 文 献:

- [1] 何宇声.复合材料(玻璃钢)与工业设计[M].北京:化学工业出版社,2005.
- [2] 张海峰,葛新石,叶宏.预测复合材料导热系数的热阻网络法[J].功能材料,2005,36(5):757-759.
ZHANG HAI-FENG, GE XIN-SHI, YE HONG. Resistance network for predicting the thermal conductivity of composite materials [J]. Journal of Functional Materials, 2005, 36(5): 757- 759.
- [3] 董其伍,刘琳琳,刘敏珊.预测聚合物基复合材料导热系数方法综述[J].化学推进剂与高分子材料,2007,5(6):36-39.
DONG QI-WU, LIU LIN-LIN, LIU MIN-SHAN. Prediction methods of thermal conductivity of polymer-based composites [J]. Chemical Propellants and Polymeric Materials, 2007, 5(6):36-19.
- [4] AGARI Y, UEDA A, NAGAI S. Thermal conductivity of a polymer composite[J]. Journal of Applied Polymer

- Science, 1993, 49: 1625-1634.
- [5] AGARI Y, UEDA A, NAGAI S. Thermal conductivity of composites in several types of dispersion systems[J]. Journal of Applied Polymer Science, 1991, 42: 1665-1669.
- [6] EVERY A G, TZOU Y, HASSELMAN D P H, et al. The effect of particle size on the thermal conductivity of ZnS/ diamond composites[J]. Acta Metall Mater, 1992, 40: 123.
- [7] 李明伟,朱景川,尹钟大. 颗粒弥散复合材料等效导热系数的估算[J]. 功能材料, 2001, 32(4): 397-398.
LI MING-WEI, ZHU JING-CHUAN, YIN ZHONG-DA. Analysis of effective thermal conductivity of particle dispersive composites[J]. Journal of Functional Materials, 2001, 32(4): 397-398.
- [8] 梁基照,李锋华. 中空微球填充 PP 复合材料传热的有限元分析[J]. 合成树脂及塑料, 2003, 20(5): 1-4.
LIANG JI-ZHAO, LI FENG-HUA. FEM analysis of heat transfer in hollow microsphere filled polypropylene composites [J]. China Synthetic Resin and Plastics, 2003, 20(5): 1-4.
- [9] 陈则韶,钱军,叶一火. 复合材料等效导热系数的理论推算[J]. 中国科学技术大学学报, 1992, 22(4): 416-424.
CHEN ZE-SHAO, QIAN JUN, YE YI-HUO. Predicting theory of effective thermal conductivity of complex material[J]. Journal of China University of Science and Technology, 1992, 22(4): 416-424.
- [10] GAO L, ZHOU X F, DING Y L. Effective thermal and electrical conductivity of carbon nanotube composites [J]. Chemical Physics Letters, 2007, 434: 297-300.
- [11] PITCHUMANI R. Evaluation of thermal conductivity of disordered composite media using a fractal model[J]. Heat Transfer, 1999, 121: 163-166.
- [12] ABOU-SENA A, YING A, ABDOU M. Experimental measurements of the effective thermal conductivity of a lithium titanate (Li_2TiO_3) pebbles-packed bed [J]. Journal of Materials Processing Technology, 2007, 181: 206-212.
- [13] RAM J, SINGH R. Effective thermal conductivity of real two-phase systems using resistor model with ellipsoidal inclusions[J]. Bulletin of Materials Science, 2004, 27(4): 373-381.
- [14] BAHRAMI M, YOVANOVICH M M, CULHAM J R. Effective thermal conductivity of rough spherical packed beds [J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2006, 49(19/20): 3691-3701.
- [15] LIANG X G, QU W. Effective thermal conductivity of gas-solid composite materials and the temperature difference effect at high temperature[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 1999, 42(10): 1885-1893.
- [16] 梁基照,李锋华. 聚合物/中空微球复合材料传热的理论模型[J]. 华南理工大学学报:自然科学版, 2005, 33(10): 34-37.
LIANG JI-ZHAO, LI FENG-HUA. Theoretical model of heat transfer for polymer/hollow micro-sphere composites[J]. Journal of South China University of Technology: Natural Science Edition, 2005, 33(10): 34-37.
- [17] 王亮亮,王方. 高导热聚丙烯复合材料导热性能的研究[J]. 广东塑料, 2005(8): 49-52.
WANG LIANG-LIANG, WANG FANG. Research on thermal conduction of graphite/PP modified composite [J]. Guangdong Plastics, 2005(8): 49-52.
- [18] MA K Q, LIU J. Nano liquid-metal fluid as ultimate coolant[J]. Physics Letters A, 2007, 361: 252-256.

(编辑 陈移峰)