



## اثرات توزیع منظم و اتفاقی نانوذرات سیلیکا بر خواص ترمو-الاستیک و ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت‌های زمینه پلیمری - مطالعه میکرومکانیکی

رضا انصاری<sup>1\*</sup>، محمدکازم حسنزاده اghdam<sup>2</sup>

1- دانشیار مهندسی مکانیک، دانشگاه گیلان، رشت

2- دانشجوی دکتری مهندسی مکانیک، دانشگاه گیلان، رشت

\* رشت، صندوق پستی 3756، r\_ansari@guilan.ac.ir

### چکیده

### اطلاعات مقاله

مقاله پژوهشی کامل

دریافت: 31 شهریور 1393

پذیرش: 23 مهر 1393

ارائه در سایت: 01 آذر 1393

کلید واژگان:

نانوکامپوزیت

میکرومکانیک

توزیع اتفاقی و منظم

ترمو-الاستیک

ویسکوالاستیک

در این پژوهش، یک مدل تحلیلی میکرومکانیکی سه بعدی به منظور بررسی اثرات توزیع اتفاقی و منظم نانوذرات سیلیکا بر خواص ترمو-الاستیک و ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت‌های زمینه پلیمری ارائه می‌شود. برای این مدل میکرومکانیکی یک المان حجمی نماینده نانوکامپوزیت از سه فاز شامل نانوذرات سیلیکا، زمینه پلیمری و فاز میانی، در نظر گرفته می‌شود. چون خواص ماده زمینه پلیمری در نزدیکی نانوذرات سیلیکا به دلیل واکنش بین دو فاز تقویت و زمینه متفاوت از خواص کلی آن پلیمر است، این بخش به عنوان فاز میانی با ضخامت و خواص مشخص در مدل سازی میکرومکانیکی در نظر گرفته می‌شود. برای شبیه سازی توزیع اتفاقی نانوذرات سیلیکا، هندسه المان حجمی نانوکامپوزیت به  $c \times r \times h$  نانوسلول مکعبی در سه بعد تقسیم می‌شود. شرایط اتصال کامل بین اجزای سازنده المان حجمی نانوکامپوزیت در نظر گرفته می‌شود. به منظور بررسی خواص ترمو-الاستیک نانوکامپوزیت، فرض می‌شود که رفتار هر سه فاز المان حجمی نماینده به صورت همگن و ایزوتروپ باشد. نتایج خواص ترمو-الاستیک بدست آمده با مدل میکرومکانیکی حاضر با توزیع اتفاقی نانوذرات سیلیکا به داده‌های تجربی نزدیکتر است. به منظور بررسی خواص ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت، رفتار نانوذرات سیلیکا به صورت الاستیک خطی و رفتار زمینه پلیمری و فاز میانی به عنوان یک ماده ویسکوالاستیک خطی فرض می‌شود. با استفاده از مدل میکرومکانیکی ارائه شده، اثرات تغییر خواص ویسکوالاستیک مواد فاز میانی و اندازه نانوذرات بر پاسخ نانوکامپوزیت بررسی می‌شود. همچنین، رفتار خزشی نانوکامپوزیت تحت سطوح مختلف تنش مورد مطالعه قرار می‌گیرد.

## Effects of regular and random distribution of silica nanoparticles on the thermo-elastic and viscoelastic properties of polymer nanocomposites- Micromechanics-based analysis

Reza Ansari\*, Mohammad Kazem Hassanzadeh Aghdam

Department of Mechanical Engineering, Guilan University, Rasht, Iran.

\* P.O.B. 3756 Rasht, Iran, r\_ansari@guilan.ac.ir

### ARTICLE INFORMATION

Original Research Paper  
Received 22 September 2014  
Accepted 15 October 2014  
Available Online 22 November 2014

### Keywords:

Nanocomposite  
Micromechanics  
Random and Regular Distribution  
Thermo-Elastic  
Viscoelastic

### ABSTRACT

In this study, a three-dimensional micromechanics-based analytical model is developed to study the effects of regular and random distribution of silica nanoparticles on the thermo-elastic and viscoelastic properties of polymer nanocomposites. The Representative Volume Element (RVE) of nanocomposites consists of three phases including silica nanoparticles, polyimide matrix and interphase. Since the polymer in the vicinity of the nanoparticles shows distinct properties from those of the bulk matrix, due to nanoparticle-polymer matrix interactions this region as interphase is considered in micromechanical modeling with specific thickness and properties. In order to simulate random distribution of silica nanoparticles into polyimide matrix, the RVE is extended to  $c \times r \times h$  cubic nano-cells in three dimensions. Perfect bonding conditions are applied between the constituents of RVE. It is assumed that all three phases of the RVE are homogeneous and isotropic to obtain the thermo-elastic response of nanocomposite. The extracted thermo-elastic properties by the micromechanical model with random distribution of silica nanoparticles are closer to the experimental data. To predict the effective viscoelastic properties of the nanocomposites, silica nanoparticles are modeled as a linear elastic material, while polyimide matrix and interphase are assumed to be as a linear viscoelastic material. The model is also used to examine the influence of varying interphase properties and silica nanoparticle size on the effective nanocomposite behavior. The overall creep behavior of the nanocomposite for several stress levels is also presented.

### 1- مقدمه

کاربردهای مهندسی تحت شرایط بارگذاری و محیطی متفاوت در حال افزایش است. استفاده از نسل جدیدی از مواد کامپوزیتی که فاز تقویت آن در مقیاس نانو است، مانند نانوذرات سیلیکا، نانوصفحات گرافن و نانوتیوب

با توجه به پیشرفت روزافزون صنایع گوناگون از جمله صنایع هوافضا، پتروشیمی، پزشکی و غیره، تقاضا برای مواد سازه‌ای برای عملکرد بهتر در

Please cite this article using:

R. Ansari, M. K. Hassanzadeh Aghdam, Effects of regular and random distribution of silica nanoparticles on the thermo-elastic and viscoelastic properties of polymer nanocomposites- Micromechanics-based analysis, *Modares Mechanical Engineering*, Vol. 15, No. 1, pp. 99-107, 2015 (In Persian)

برای ارجاع به این مقاله از عبارت ذیل استفاده نمایید:

www.SID.ir

به‌عنوان یک ماده الاستیک، مدول یانگ و استحکام تسلیم نانوکامپوزیت زمینه پلیمری تقویت شده با نانوذرات سیلیکا را بدست آوردند. لی و همکاران [22] خواص ویسکوالاستیک کامپوزیت زمینه پلیمری تقویت شده با نانوتیوب کربنی را بدون در نظر گرفتن فاز میانی مورد بررسی قرار دادند. اسنیپ و همکاران [23] با در نظر گرفتن فاز میانی به‌عنوان یک ماده الاستیک، اثر فاز میانی را بر رفتار نانوکامپوزیت زمینه پلیمری مطالعه کردند. در این مدل‌سازی توزیع نانوذرات به صورت منظم فرض شد. اگر زمینه به‌عنوان یک ماده ویسکوالاستیک در نظر گرفته شود و در صورتی که فاز میانی با مواد زمینه پلیمری تشکیل شود، پس بایستی فاز میانی را یک ماده ویسکوالاستیک در نظر گرفت. از طرفی چون در هنگام تولید نانوکامپوزیت‌ها توزیع نانوذرات به صورت اتفاقی است، در نظر گرفتن آرایش منظم در مدل‌سازی ممکن است از نتایج واقعی دور باشد. با توجه به تحقیقات انجام گرفته مطالعه‌ای درخصوص تأثیر توزیع نانوذرات در زمینه با در نظر گرفتن اثرات فاز میانی بر خواص ترمو-الاستیک و ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت‌ها انجام نشده است. از طرفی بیشتر شبیه‌سازی‌ها مربوط به بررسی مدول یانگ نانوکامپوزیت‌ها بوده و با وجود اهمیت رفتار خزشی، مطالعات کمتری در این حوزه انجام شده است.

در این پژوهش، مدل میکرومکانیکی سلول واحد ساده شده [25,24]<sup>7</sup> به‌منظور بررسی اثرات توزیع اتفاقی و منظم نانوذرات سیلیکا بر خواص ترمو-الاستیک و ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت‌های زمینه پلیمری توسعه داده می‌شود. با توجه به نقش مهم فاز میانی در نانوکامپوزیت‌ها، المان حجمی نماینده<sup>8</sup> از سه فاز نانوذرات، زمینه پلیمری و فاز میانی تشکیل می‌شود. به‌منظور توزیع اتفاقی نانوذرات در زمینه، المان حجمی نماینده به  $C \times r \times h$  نوسول مکعبی در سه بعد گسترش می‌یابد. نتایج خواص ترمو-الاستیک بدست آمده با مدل میکرومکانیکی حاضر با داده‌های تجربی مقایسه می‌شوند. برای بررسی خواص ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت، رفتار نانوذرات سیلیکا به صورت الاستیک خطی و رفتار زمینه پلیمری و فاز میانی به‌عنوان یک ماده ویسکوالاستیک خطی فرض می‌شود. با بکارگیری اصل تناظر<sup>9</sup> که بین ویسکوالاستیسیته در حوزه زمان و الاستیسیته در حوزه فرکانس وجود دارد، خواص مؤثر ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت مورد مطالعه قرار می‌گیرد. تبدیل حوزه زمان به فرکانس و معکوس آن توسط تبدیل لاپلاس-کارسون انجام می‌گیرد. با استفاده از مدل آرایه شده، اثرات اندازه نانوذرات سیلیکا و تغییر خواص فاز میانی بر رفتار نانوکامپوزیت با توجه به توزیع منظم و اتفاقی نانوذرات مطالعه می‌شود.

## 2- المان حجمی نماینده نانوکامپوزیت

شکل‌های 1 و 2 بترتیب المان حجمی نماینده نانوکامپوزیت را با توزیع اتفاقی و منظم نانوذرات سیلیکا درون زمینه پلیمری نشان می‌دهند. حالت کروی نانوذرات به صورت مکعب مدل می‌شود. قطر نانوذرات برابر طول مکعب در نظر گرفته می‌شوند. همان‌طور که شکل‌های 1 و 2 نشان می‌دهند المان حجمی نماینده از سه فاز نانوذرات، زمینه پلیمری و فاز میانی که احاطه کننده نانوذرات است، تشکیل می‌شود. در شکل 1 المان حجمی نماینده دارای  $C \times r \times h$  نوسلول با طول ضلع  $L_h$  در جهت محور  $z$ ، طول ضلع  $L_c$  در جهت محور  $x$  و طول ضلع  $L_r$  در جهت محور  $y$  است. اگر  $i$  متغیر شمارنده در جهت  $x$ ،  $j$  در جهت  $y$  و  $k$  در جهت  $z$  باشد، هر سلول با نام  $ijk$  شناخته می‌-

کربنی، با توجه به خواص مکانیکی [1,2]، حرارتی [3,4] و الکتریکی [5] بسیار مناسب آنها در مقایسه با مواد کامپوزیتی مرسوم که فاز تقویت آن در مقیاس میکرو بوده، رو به رشد است. مطالعات قبلی نشان داده است که اضافه کردن این نانوپرکننده‌ها<sup>1</sup> به پلیمر، حتی در درصدهای حجمی یا وزنی کم، می‌تواند خواص فیزیکی این مواد را به مقدار زیادی بهبود ببخشد [6-8]. در یک درصد حجمی مشخص، نانوپرکننده‌ها در مقایسه با میکروپرکننده‌ها<sup>2</sup> نسبت سطح تماس (با زمینه پلیمری) به حجم بسیار بالاتری را در مواد کامپوزیتی به خود اختصاص می‌دهند. در نتیجه واکنش‌پذیری بین دو فاز تقویت و زمینه به میزان قابل توجهی افزایش می‌یابد. این امر موجب می‌شود که خواص پلیمر در نزدیکی نانوذرات نسبت به سایر نقاط متفاوت باشد. این ناحیه به‌عنوان فاز میانی بین نانوذرات و زمینه، با ضخامت معین و خواص بهتر از زمینه، شناخته می‌شود [9,10]. بنابراین بهبود خواص مکانیکی و حرارتی در مواد نانوکامپوزیتی نسبت به کامپوزیت‌های رایج به جهت تشکیل فاز میانی با خواص بهتر از زمینه است.

به‌منظور پیش‌بینی رفتار نانوکامپوزیت‌ها شبیه‌سازی دینامیک مولکولی<sup>3</sup> [11,12] و مدل‌های میکرومکانیکی [13-16] مورد استفاده قرار می‌گیرد. استفاده از روش‌های مبتنی بر شبیه‌سازی دینامیک مولکولی بسیار پیچیده و زمان‌بر می‌باشد. بررسی‌های موجود در تحقیقات قبلی کارایی مدل‌های میکرومکانیکی را برای استخراج رفتار نانوکامپوزیت‌ها نشان داده است [13-17]. با بکارگیری مدل‌های میکرومکانیکی می‌توان خواص ماکروسکوپی مواد چندجنسی از ریزساختارهای تشکیل‌دهنده آن ماده بدست آورد. خواص مؤثر کامپوزیت بر حسب خواص اجزای تشکیل‌دهنده شامل فاز تقویت، زمینه و فاز میانی ناشی از برهم‌کنش فاز تقویت و زمینه، نسبت حجمی آن‌ها و عکس‌العمل متقابل بین این فازها، که مربوط به هندسه ریزساختاری است، تعیین می‌شود. تحقیقات نشان داده است که فاز میانی [16-19] و توزیع نانوپرکننده‌ها [19-21] در زمینه پلیمری از جمله عوامل مؤثر بر رفتار نانوکامپوزیت‌ها هستند.

جوشی و همکاران [13] با روش المان محدود اثرات جهت نانوتیوب کربنی را بر خواص الاستیک نانوکامپوزیت بدون در نظر گرفتن اثرات فاز میانی بررسی کردند. در این مطالعه میکرومکانیکی توزیع نانوتیوب کربنی در زمینه به صورت منظم مدل‌سازی شد. باکسچر و رایبسون [14] با مدل‌سازی میکرومکانیکی بر پایه روش سلولی اثرات مدول یانگ فاز میانی را بر خواص الاستیک نانوکامپوزیت با توزیع منظم نانوذرات مورد بررسی قرار دادند. جوشی و یوآدای [15] اثرات فاز میانی را بر خواص الاستیک نانوکامپوزیت متشکل از نانوتیوب چندجداره<sup>4</sup> با توزیع منظم به روش میکرومکانیکی المان محدود مورد مطالعه قرار دادند. یاس و هشمتی [16] با استفاده از مدل میکرومکانیکی موری-تاناکا خواص الاستیک پلیمر تقویت شده با نانوتیوب کربنی را جهت تحلیل رفتار دینامیکی نانوکامپوزیت بدست آوردند. در این تحلیل اثرات فاز میانی در مدل‌سازی منظور شد. مدل میکرومکانیکی خودسازگار<sup>5</sup> برای مطالعه اثرات فاز میانی و نسبت منظر فاز تقویت، بر خواص الاستیک نانوکامپوزیت در [17] بکار گرفته شد. با استفاده از شبیه‌سازی چند مقیاسه<sup>6</sup> خواص الاستیک کامپوزیت تقویت شده با نانوتیوب کربنی در [18] مورد مطالعه قرار گرفت. بوئال و همکاران [19] با در نظر گرفتن فاز میانی

1- Nanofillers  
2- Microfiller  
3- Molecular Dynamics Simulation  
4- Multiwalled Carbon Nanotube  
5- Self-Consistent Method  
6- Multi-Scale Simulation

7- Simplified Unit Cell  
8- Representative Volume Element  
9- Correspondence Principle

ردیف در همان جهت است، پس می توان رابطه (3) را نوشت:

$$\sum_{i=1}^c a_i \varepsilon_x^{i11} = \sum_{i=1}^c a_i \varepsilon_x^{ijk} = L_c \bar{\varepsilon}_x \quad (j \times k \neq 1)$$

$$\sum_{j=1}^h b_j \varepsilon_y^{1j1} = \sum_{j=1}^h b_j \varepsilon_y^{ijk} = L_r \bar{\varepsilon}_y \quad (i \times k \neq 1)$$

$$\sum_{k=1}^h d_k \varepsilon_z^{11k} = \sum_{k=1}^h d_k \varepsilon_z^{ijk} = L_h \bar{\varepsilon}_z \quad (i \times j \neq 1) \quad (3)$$

که  $\varepsilon_{ijk}$  کرنش میکرو در سلول  $ijk$  و  $\bar{\varepsilon}_i$  کرنش ماکرو را نشان می دهد. معادله ساختاری ترمو-الاستیسیته سه بعدی برای سلول  $ijk$  به صورت رابطه (4) نوشته می شود:

$$\varepsilon_{ijk} = S_{ijk} \sigma_{ijk} + \alpha_{ijk} \Delta T \quad (4)$$

که  $\alpha_{ijk}$  و  $S_{ijk}$  به ترتیب ماتریس های ضریب انبساط حرارتی و نرمی (الاستیک یا ویسکوالاستیک) هستند و  $\Delta T$  اختلاف دمای فرایند ساخت تا دمای اتاق و منشأ تنش پسماند حرارتی حین ساخت است. با جایگزینی رابطه (4) در رابطه (3) و با استفاده از روابط (1) و (2)، یک سیستم دستگاه معادلات خطی با  $rc + rh + hc$  معادله با همین تعداد مجهول بدست می آید.

$$[A]_{m \times m} \{\sigma\}_{m \times 1} = \{F\}_{m \times 1} \quad (m = ch + rh + rc) \quad (5)$$

که  $[A]$  ماتریس ضرایب،  $\{\sigma\}$  و  $\{F\}$  نیز به ترتیب بردار تنش و نیرو می باشند.

#### 4- ویسکوالاستیسیته خطی

مواد ویسکوالاستیک به موادی گفته می شود که پاسخ آنها وابسته به زمان است. بعلاوه، مواد ویسکوالاستیک تحت تنش ثابت رفتار خزشی نشان می دهند. معادلات ساختاری برای رفتار ویسکوالاستیک خطی مواد را می توان به صورت روابط (7.6) بیان کرد [22].

$$\sigma(t) = \int_0^t L(t-\tau) \dot{\varepsilon}(\tau) d\tau \quad (6)$$

$$\varepsilon(t) = \int_0^t M(t-\tau) \dot{\sigma}(\tau) d\tau \quad (7)$$

که نقاط بالای متغیرها مشتق نسبت به زمان را نشان می دهد.  $L(t)$  و  $M(t)$  بترتیب تانسورهای سفتی رهایش تنش و نرمی خزشی هستند. مسایل تحلیل تنش برای مواد ویسکوالاستیک به دلیل وارد شدن متغیر زمان نسبت به مواد الاستیک پیچیده تر می باشد. با این وجود مساله ویسکوالاستیک خطی را با استفاده از تبدیلات انتگرالی می توان به مساله الاستیک معادل تبدیل کرد. این ارتباط به عنوان اصل تناظر نامیده می شود، بنابراین اگر تبدیل لاپلاس-کارسون [28]

$$\hat{f}(s) = s \int_0^{\infty} e^{-s\tau} f(\tau) d\tau \quad (8)$$

به معادلات (6) و (7) اعمال شود، می توان مساله را از حوزه زمان به حوزه فرکانس منتقل کرد. سپس معادلات ساختاری را می توان به شکل روابط (10.9) نوشت:

$$\hat{\sigma}(s) = \hat{L}(s) \hat{\varepsilon}(s) \quad (9)$$

$$\hat{\varepsilon}(s) = \hat{M}(s) \hat{\sigma}(s) \quad (10)$$

از معادلات (9) و (10) می توان رابطه (11) را نتیجه گرفت:

$$\hat{L}(s) \hat{M}(s) = \hat{M}(s) \hat{L}(s) = I \quad (11)$$

ا ماتریس واحد است. نتیجه فوق تنها با اعمال تبدیل لاپلاس-کارسون به جای تبدیل لاپلاس بدست می آید. با انجام تبدیل لاپلاس-کارسون معکوس،

شود و طول هر یک از سلول ها در جهت  $x$  با  $a_i$ ، در جهت  $y$  با  $b_j$  و در جهت  $z$  با  $d_k$  مشخص می شود. ضخامت فاز میانی نیز برابر  $t$  در نظر گرفته می شود.

#### 3- معادلات میکرومکانیکی حاکم

بر اساس ایده مدل های سلول واحد [21-23، 27] برای استخراج روابط میکرومکانیکی حاکم، فرض می شود که مؤلفه های جایجایی داخل هر سلول المان نماینده توابعی خطی باشند. همچنین فرض می شود که تنش های نرمال وارده بر المان حجمی نماینده نانوکامپوزیت هیچ گونه تنش برشی داخل آن ایجاد نمی کند و بالعکس. از معادله تعادل تنش های میکرو ( $\sigma_i^{ijk}$ ) در سلول ها و تنش های ماکرو ( $S_i$ ) اعمالی در مرز المان نماینده رابطه (1) بدست می آید:

$$\sum_{k=1}^h \sum_{j=1}^r d_k b_j \sigma_x^{1jk} = S_x L_r L_h$$

$$\sum_{k=1}^h \sum_{i=1}^c d_k a_i \sigma_y^{i1k} = S_y L_c L_h$$

$$\sum_{j=1}^r \sum_{i=1}^c b_j a_i \sigma_z^{ij1} = S_z L_r L_c \quad (1)$$

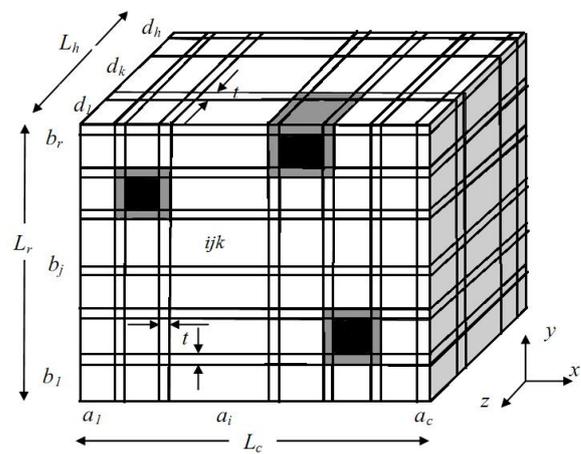
رابطه (2) از تعادل تنش های عمودی در سطوح مشترک هر دو سلول مجاور بدست می آید:

$$\sigma_x^{1jk} = \sigma_x^{ijk} \quad (i > 1)$$

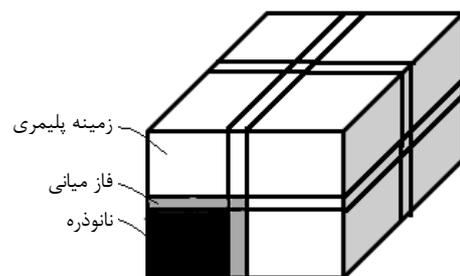
$$\sigma_y^{i1k} = \sigma_y^{ijk} \quad (j > 1)$$

$$\sigma_z^{ij1} = \sigma_z^{ijk} \quad (k > 1) \quad (2)$$

با فرض اتصال کامل بین اجزای سازنده المان حجمی نانوکامپوزیت، تغییر مکان المان نماینده در یک جهت برابر مجموع تغییر مکان سلول های یک



شکل 1 المان حجمی نماینده با توزیع اتفاقی نانوذرات



شکل 2 المان حجمی نماینده با توزیع منظم نانوذرات

حل مسأله ویسکوالاستیک در حوزه زمان بدست می‌آید.

### 5- نوع مواد

سیستم نانوکامپوزیت در نظر گرفته شده در این پژوهش شامل نانوذرات سیلیکا درون زمینه پلی‌آمیدی است. رفتار نانوذرات سیلیکا به صورت الاستیک خطی فرض می‌شود. قطر این نانوذرات برابر 50 نانومتر در نظر گرفته می‌شود [19]. برای مطالعه خواص ترمو-الاستیک، زمینه و فاز میانی به‌عنوان یک ماده همگن و ایزوتروپ مدل می‌شوند. خواص ترمو-الاستیک سه فاز المان حجمی نماینده در جدول 1 نشان داده شده است [19,29]. جزئیات مربوط به ساخت نانوکامپوزیت مورد نظر را می‌توان در مرجع [30] یافت.

برای بررسی خواص ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت، زمینه پلی‌آمیدی به‌عنوان یک ماده ویسکوالاستیک مدل می‌شود. از آنجا که نانوذرات سیلیکا به صورت الاستیک مدل می‌شوند، پاسخ ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت به زمینه پلی‌آمیدی بستگی دارد. تابع نرمی خزشی برای زمینه پلی‌آمیدی در حوزه زمان به صورت رابطه (12) بیان می‌شود [22]:

$$M_0 = D_0 + D_1 t^n \quad (12)$$

که  $D_0$  نرمی الاستیک اولیه و  $D_1$  و  $n$  داده‌های تجربی می‌باشند. با اعمال تبدیل لاپلاس-کارسون به معادله 12، می‌توان رابطه (13) را نوشت:

$$\bar{M}_0(s) = D_0 + \frac{D_1 \Gamma(n+1)}{s^n} \quad (13)$$

نسبت پواسون و سایر خواص مربوط به مدل ویسکوالاستیک برای زمینه در جدول 2 ذکر شده است [22].

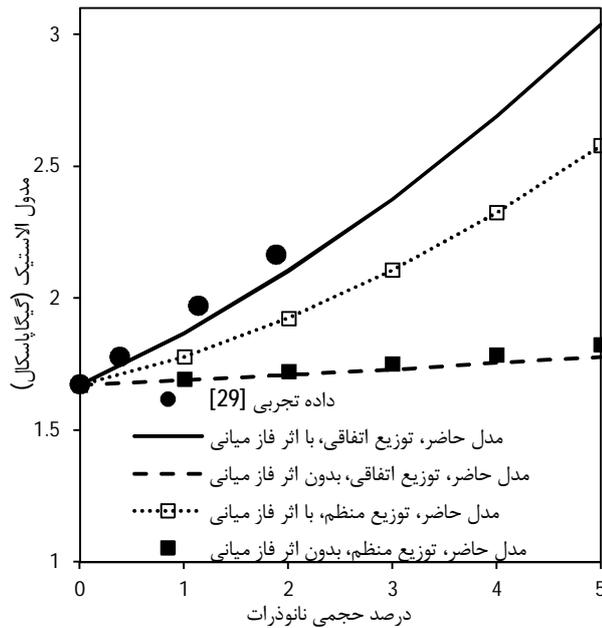
فاز میانی نیز به‌عنوان یک ماده ویسکوالاستیک با تابع نرمی خزشی که در معادله (12) داده شده، مدل می‌شود.

### 6- نتایج و بحث

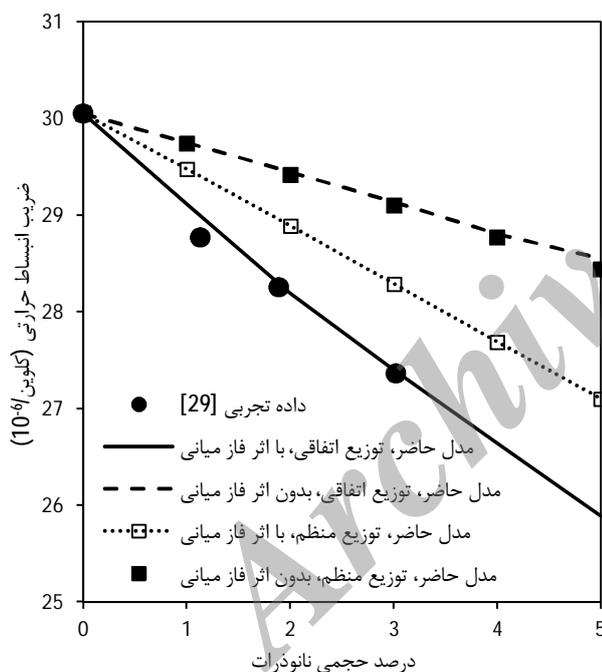
با استفاده از مدل میکرومکانیکی تحلیلی ارایه شده در بخش 3، خواص ترمو-الاستیک و ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت بررسی می‌شود. به‌منظور توزیع اتفاقی نانوذرات سیلیکا در زمینه پلیمری المان حجمی نماینده به  $20 \times 20 \times 20$  سلول گسترش می‌یابد. ضخامت فاز میانی برابر 30 نانومتر در نظر گرفته می‌شود.

#### 6-1- خواص ترمو-الاستیک نانوکامپوزیت

مدول الاستیک و ضریب انبساط حرارتی نانوکامپوزیت در مقابل درصد حجمی نانوذرات به ترتیب در شکل‌های 3 و 4 با وجود فاز میانی و بدون آن نشان داده شده است.



شکل 3 مدول الاستیک نانوکامپوزیت در برابر درصد حجمی نانوذرات



شکل 4 ضریب انبساط حرارتی نانوکامپوزیت در برابر درصد حجمی نانوذرات

با توجه به شکل‌های 3 و 4، می‌توان نتیجه گرفت که نتایج مدل میکرومکانیکی حاضر با توزیع اتفاقی نانوذرات بسیار نزدیک به داده‌های تجربی می‌باشد. شکل‌های 3 و 4 نقش مهم فاز میانی را در مدل‌سازی و پیش‌بینی رفتار نانوکامپوزیت‌ها نشان می‌دهند. بدون در نظر گرفتن اثرات فاز میانی نتایج مدل میکرومکانیکی با توزیع منظم و اتفاقی بسیار نزدیک به هم هستند. گرچه افزودن نانوذرات غیرآلی از جمله نانوذرات سیلیکا موجب بهبود خواص پلیمرها می‌شود اما کلوخه‌شدن نانوذرات و به دنبال آن توزیع نامناسب آن در زمینه پلیمری باعث کاهش خواص نانوکامپوزیت می‌شود [32,31].

جدول 1 خواص اجزای نانوکامپوزیت [19,29]

ماده	سیلیکا	پلی‌آمید	فاز میانی
مدول ینگ (گیگاپاسکال)	88/7	1/679	16/79
نسبت پواسون	0/23	0/4	0/4
ضریب انبساط حرارتی (کلوین <sup>-6</sup> )	0/55	30/05	22/55

جدول 2 خواص ویسکوالاستیک زمینه [22]

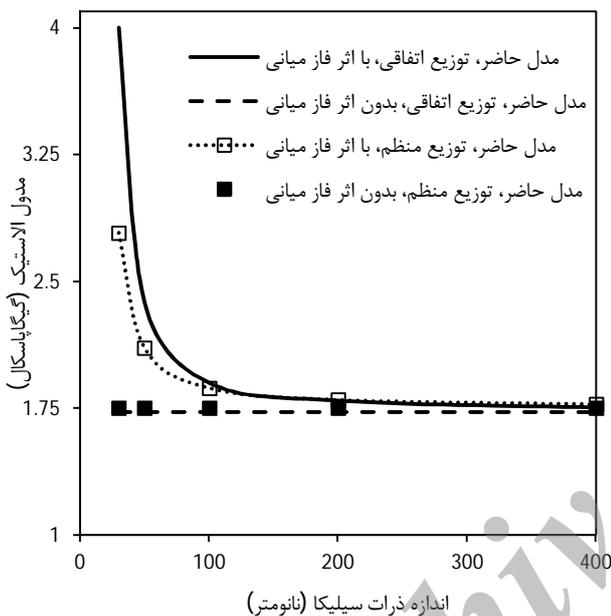
ماده	پلی‌آمید
نسبت پواسون	0/367
$D_{0m} \left(\frac{1}{\text{گیگاپاسکال}}\right)$	0/375
$D_{1m} \left(\frac{1}{\text{ساعت، گیگاپاسکال}}\right)$	0/051606
$n_m$	0/4103

شکل 7 اثر اندازه نانوذرات بر مدول الاستیک نانوکامپوزیت با مدل میکرومکانیکی ارایه شده را نشان می‌دهد. درصد حجمی نانوذرات سیلیکا 3% است. با منظور نمودن فاز میانی در مدل‌سازی میکرومکانیکی، همان‌طور که شکل 7 نشان می‌دهد، با کاهش اندازه نانوذرات مدول الاستیک نانوکامپوزیت افزایش می‌یابد. در واقع دلیل اصلی این افزایش در مدول الاستیک نانوکامپوزیت تأثیر فاز میانی است. با کوچکتر شدن اندازه نانوذرات اثر فاز میانی بیشتر می‌شود. همان‌گونه که شکل 7 نشان می‌دهد، با افزایش اندازه نانوذرات اختلاف بین نتایج مدل‌سازی با در نظر گرفتن توزیع اتفاقی و منظم نانوذرات درون زمینه بسیار کم می‌شود.

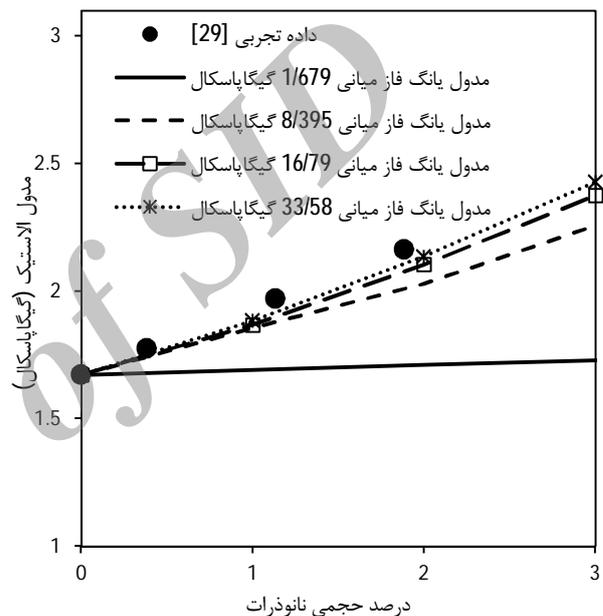
در شکل 8 اثر اندازه نانوذرات بر ضریب انبساط حرارتی نانوکامپوزیت نشان داده شده است.

در شکل 5 تأثیر مدول یانگ فاز میانی بر مدول یانگ نانوکامپوزیت با توزیع اتفاقی نانوذرات نشان داده شده است. با افزایش مدول یانگ فاز میانی تا حدود 10 برابر مدول یانگ زمینه، مدول الاستیک نانوکامپوزیت افزایش می‌یابد. افزایش مدول یانگ فاز میانی بعد از این مقدار آستانه‌ای (16/79 گیگاپاسکال) تأثیر چندانی بر پاسخ الاستیک نانوکامپوزیت ندارد و نتایج مدل‌سازی میکرومکانیکی بسیار نزدیک بهم هستند.

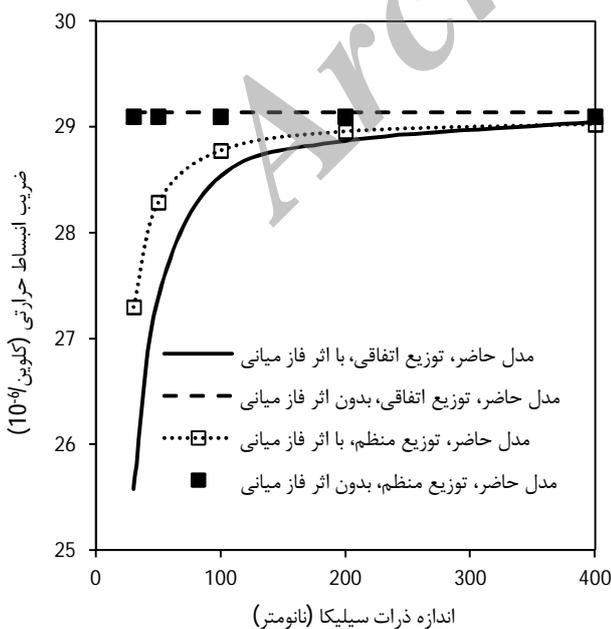
شکل 6 تأثیر ضریب انبساط حرارتی فاز میانی (کلوین/10<sup>-6</sup>) را بر ضریب انبساط حرارتی نانوکامپوزیت با توزیع اتفاقی نانوذرات نشان می‌دهد. با توجه به شکل 6، بهترین مقدار برای انتخاب ضریب انبساط حرارتی فاز میانی (کلوین/1)  $22/55 \times 10^{-6}$  است که نزدیکترین نتایج را به داده‌های تجربی بدست می‌دهد.



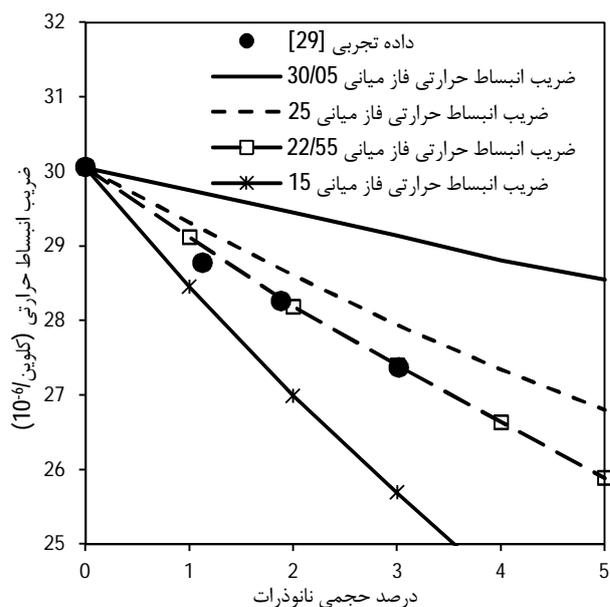
شکل 7 تأثیر اندازه‌ی نانوذرات بر مدول الاستیک نانوکامپوزیت



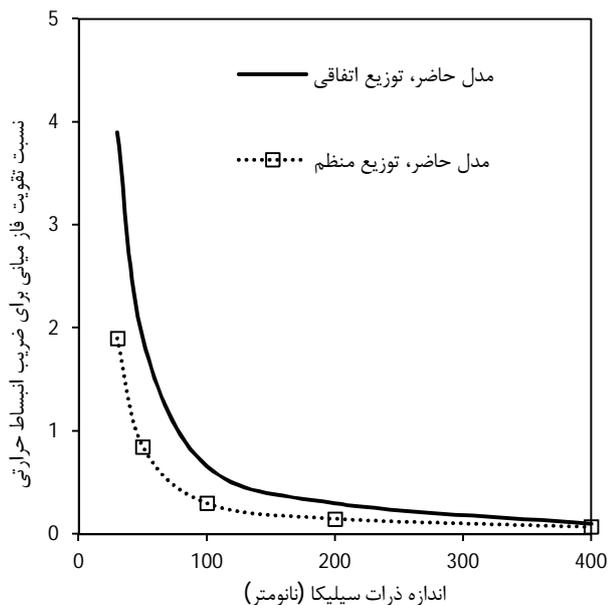
شکل 5 تأثیر مدول یانگ فاز میانی بر مدول الاستیک نانوکامپوزیت



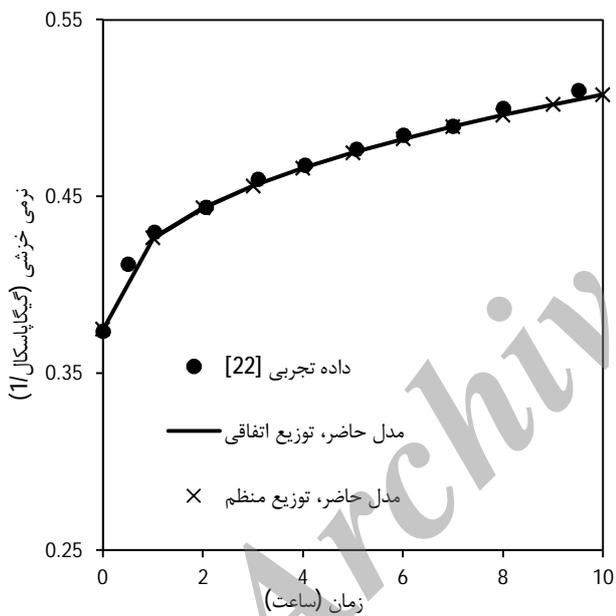
شکل 8 تأثیر اندازه‌ی نانوذرات بر ضریب انبساط حرارتی نانوکامپوزیت



شکل 6 تأثیر ضریب انبساط حرارتی فاز میانی بر ضریب انبساط حرارتی نانوکامپوزیت



شکل 10 شدت اثر فاز میانی بر ضریب انبساط حرارتی در برابر اندازه نانوذرات



شکل 11 رفتار نرمی خزشی پلی‌آمید

حال اثرات خواص مواد فاز میانی به‌عنوان یک ماده ویسکوالاستیک خطی  $(n_i, D_{1i}, D_{0i})$  با توجه به توزیع اتفاقی و منظم نانوذرات سیلیکا درون زمینه پلی‌آمیدی که خواص آن در جدول 2 ذکر شده است، بر پاسخ نانوکامپوزیت مورد بررسی قرار می‌گیرد. شکل‌های 12 تا 14 به ترتیب اثرات  $n_i$  و  $D_{1i}$  و  $D_{0i}$  را بر رفتار ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت تحت تنش ثابت 12 مگاپاسکال نشان می‌دهند. نسبت پواسون فاز میانی برابر نسبت پواسون زمینه در نظر گرفته می‌شود. درصد حجمی نانوذرات سیلیکا 3% و خواص سیلیکا در جدول 1 آمده است. همان‌طور که شکل‌های 12 تا 14 نشان می‌دهند، برای خواص ویسکوالاستیک فاز میانی  $(n_i, D_{1i}, D_{0i})$  یک مقدار آستانه‌ای وجود دارد که تغییرات نرمی خزشی نانوکامپوزیت بعد از این مقدار ویژه بسیار کم است.

همان‌طور که از شکل 8 مشاهده می‌شود، با در نظر گرفتن اثرات فاز میانی، ضریب انبساط حرارتی نانوکامپوزیت با افزایش اندازه‌ی نانوذرات تا یک مقدار مشخصی افزایش می‌یابد. بعد از این مقدار آستانه‌ای تفاوت زیادی بین نتایج مدل‌سازی با در نظر گرفتن فاز میانی و بدون آن مشاهده نمی‌شود. با کاهش اندازه نانوذرات ضریب انبساط حرارتی نانوکامپوزیت کاهش می‌یابد. شکل‌های 7 و 8 نشان می‌دهند که بدون در نظر گرفتن فاز میانی، نتایج توزیع اتفاقی و منظم نانوذرات در زمینه با اندازه‌های مختلف تأثیر چندانی بر پاسخ مواد کامپوزیتی ندارند.

به‌منظور مطالعه دقیق‌تر شدت تأثیر فاز میانی بر پاسخ نانوکامپوزیت، نسبت تقویت فاز میانی [4] تعریف می‌شود.

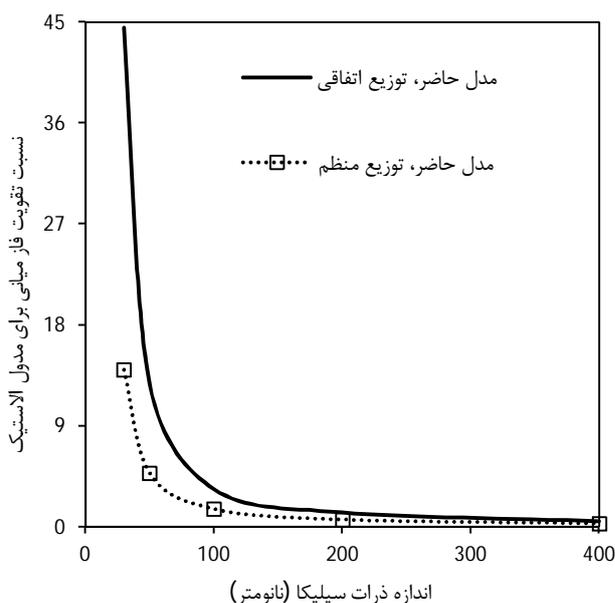
$$IRR, C = \left| \frac{C_{if} - C_f}{C_f - M} \right| \quad (14)$$

که  $C_{if}$  خواص نانوکامپوزیت با در نظر گرفتن فاز میانی و  $C_f$  خواص نانوکامپوزیت بدون منظور نمودن اثرات فاز میانی است. در رابطه (14)،  $M$  نیز خاصیت زمینه است. در حقیقت دلیل عمده استفاده از این تعریف جداکردن اثرات تقویت ماده ناشی از هندسه فاز تقویت و یا خواص مواد از اثرات فاز میانی می‌باشد.

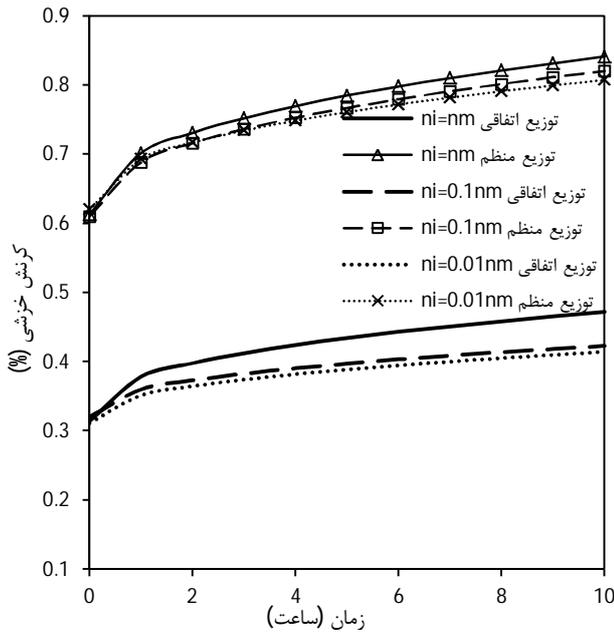
در شکل‌های 9 و 10 شدت اثر فاز میانی با در نظر گرفتن اندازه‌های مختلف نانوذرات به ترتیب برای مدول الاستیک و ضریب انبساط حرارتی نشان داده شده است. با توجه به شکل‌های 9 و 10، شدت اثر فاز میانی با کوچکتر شدن اندازه نانوذرات بیشتر می‌شود. با افزایش اندازه نانوذرات شدت اثر فاز میانی کم شده تا به مقدار ثابتی همگرا شود.

#### 6-2- خواص ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت

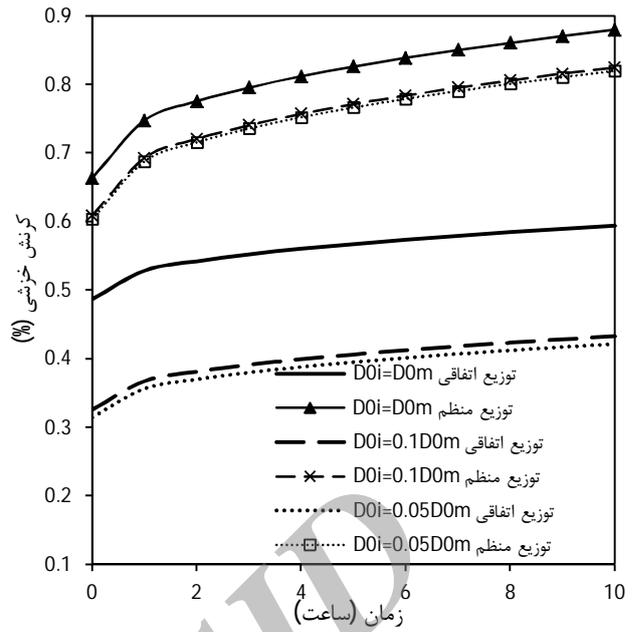
از آنجا که داده‌های تجربی برای رفتار خزشی پلی‌آمید در تحقیقات قبلی [22] ارایه شده، ابتدا تمام سلول‌های المان حجمی نماینده از جنس پلی‌آمید در نظر گرفته می‌شود. نتایج مدل حاضر به همراه داده‌های تجربی در شکل 11 نشان داده شده‌اند. همان‌طور که از شکل 11 مشاهده می‌شود نتایج پیش‌بینی شده توسط مدل حاضر با توزیع اتفاقی و منظم نانوذرات منطبق بر داده‌های تجربی است.



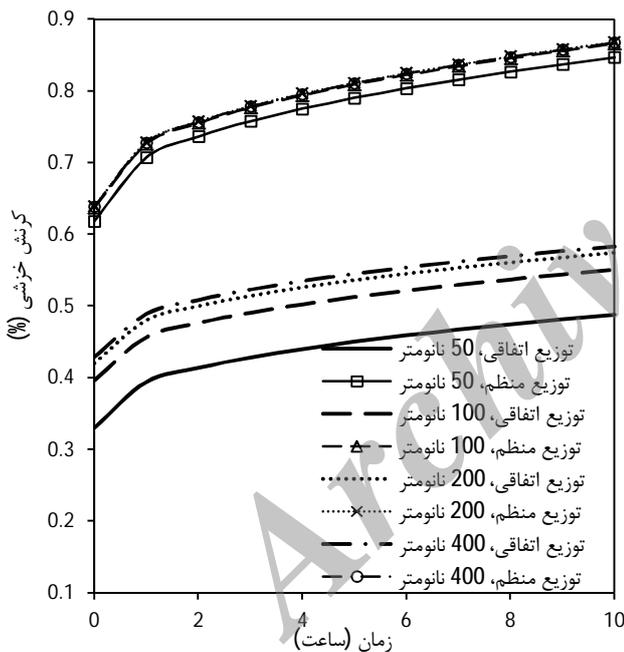
شکل 9 شدت اثر فاز میانی بر مدول الاستیک نانوکامپوزیت در برابر اندازه نانوذرات



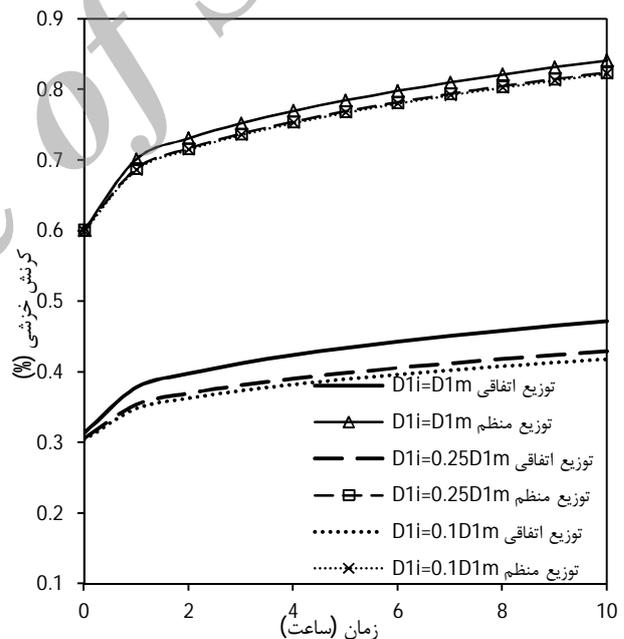
شکل 14 اثر  $n_i$  بر کرنش خزشی نانوکامپوزیت،  $n_i$  به‌عنوان تابعی از  $n_m$  در نظر گرفته شده است،  $D_{1i} = D_{1m}$ ,  $D_{0i} = 0$



شکل 12 اثر  $D_{0i}$  بر کرنش خزشی نانوکامپوزیت،  $D_{0i}$  به‌عنوان تابعی از  $D_{0m}$  در نظر گرفته شده است،  $D_{1i} = 0$



شکل 15 تأثیر اندازه نانوذرات بر رفتار خزشی نانوکامپوزیت



شکل 13 اثر  $D_{1i}$  بر کرنش خزشی نانوکامپوزیت،  $D_{1i}$  به‌عنوان تابعی از  $D_{1m}$  در نظر گرفته شده است،  $n_i = n_m$ ,  $D_{0i} = 0$

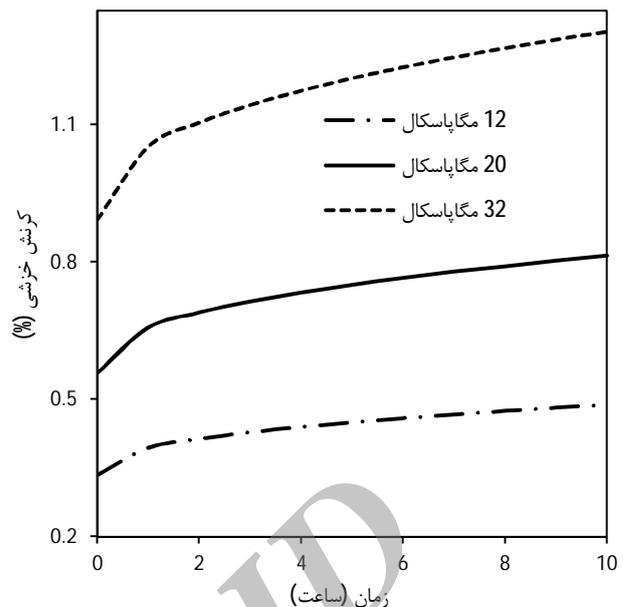
در شکل 16 رفتار خزشی نانوکامپوزیت تحت سطوح مختلف تنش با توزیع اتفاقی نانوذرات نشان داده شده است. درصد حجمی نانوذرات سیلیکا 3% است. در این مدل‌سازی خواص ویسکوالاستیک فاز میانی،  $D_{0i} = 0.1D_{0m}$ ،  $n_i = n_m$  و  $D_{1i} = D_{1m}$  در نظر گرفته شده است.

#### 7- نتیجه‌گیری

در این پژوهش یک مدل میکرومکانیکی تحلیلی بر پایه روش سلول واحد برای بررسی رفتار ترمو-الاستیک و ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت با توزیع اتفاقی و منظم نانوذرات ارائه شد. با توجه به اینکه پلیمر در نزدیکی نانوذرات

حال اثرات اندازه نانوذرات سیلیکا بر کرنش خزشی نانوکامپوزیت مورد بررسی قرار می‌گیرد. نتایج مدل میکرومکانیکی ارائه شده با توزیع اتفاقی و منظم نانوذرات در شکل 15 نشان داده شده است. درصد حجمی نانوذرات سیلیکا 3% است. در این مدل‌سازی خواص ویسکوالاستیک فاز میانی،  $D_{0i} = 0.1D_{0m}$ ،  $n_i = n_m$  و  $D_{1i} = D_{1m}$  در نظر گرفته شده است. با توجه به شکل 15 مشاهده می‌شود که با افزایش اندازه نانوذرات تا یک مقدار معینی، نرمی خزشی نانوکامپوزیت افزایش می‌یابد. همچنین در این شکل اختلاف نتایج مدل میکرومکانیکی ارائه شده بین توزیع اتفاقی نانوذرات با توزیع منظم نشان داده شده است.

- Modares Mechanical Engineering*, Vol. 13, No. 12, pp. 25-35, 2013. (In Persian)
- [3] C. Y. Wei, D. Shrivastava, K. Choi, Thermal expansion and diffusion coefficients of carbon nanotube-polymer composites, *Nano Letters*, Vol. 2, No. 6, pp. 647-650, 2002.
- [4] B. Mortazavi, J. Bardou, S. Ahzi, Interphase effect on the elastic and thermal conductivity response of polymer nanocomposite materials: 3D finite element study, *Computational Materials Science*, Vol. 69, pp. 100-106, 2013.
- [5] G. D. Seidel, D. C. Lagoudas, A micromechanics model for the electrical conductivity of nanotube-polymer nanocomposites, *Journal of Composite Materials*, Vol. 43, No. 9, pp. 917-941, 2009.
- [6] Z. D. Wang, J. J. Lu, Y. Li, S. Y. Fu, S. Q. Jiang, X. X. Zhao, Low temperature properties of PI/SiO<sub>2</sub> nanocomposite films, *Materials Science and Engineering B*, Vol. 123, pp. 216-221, 2005.
- [7] R. Ansari, S. Malakpour, M. Faghinasiri, S. Ajori, Structural and elastic properties of carbon nanotubes containing Fe atoms using first principles, *Superlattices and Microstructures*, Vol. 64, pp. 220-226, 2013.
- [8] A. K. Mohapatra, S. Mohanty, S. K. Nayak, Dynamic mechanical and thermal properties of poly(lactide)-layered silicate nanocomposites, *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, Vol. 27, No. 5, pp. 699-716, 2014.
- [9] G. M. Odegard, T. C. Clancy, T. S. Gates, Modeling of the mechanical properties of nanoparticle/polymer composites, *Polymer*, Vol. 46, pp. 553-562, 2005.
- [10] J. L. Tsai, S. H. Tzeng, Y. T. Chiu, Characterizing elastic properties of carbon nanotubes/polyimide nanocomposites using multi-scale simulation, *Composites Part B*, Vol. 41, pp. 106-115, 2010.
- [11] J. S. Smith, D. Bedrov, G. D. Smith, A molecular dynamics simulation study of nanoparticle interactions in a model polymer-nanoparticle composite, *Composites Science and Technology*, Vol. 63, pp. 1599-1605, 2003.
- [12] R. Ansari, S. Rouhi, S. Ajori, Elastic properties and large deformation of two-dimensional silicene nanosheets using molecular dynamics, *Superlattices and Microstructures*, Vol. 65, pp. 64-70, 2014.
- [13] U. A. Joshi, S. C. Sharma, S. P. Harsha, Effect of carbon nanotube orientation on the mechanical properties of nanocomposites, *Composites Part B*, Vol. 43, pp. 2063-2071, 2012.
- [14] S. C. Baxter, C. T. Robinson, Pseudo-percolation: Critical volume fractions and mechanical percolation in polymer nanocomposites, *Composites Science and Technology*, Vol. 71, pp. 1273-1279, 2011.
- [15] P. Joshi, S. H. Upadhyay, Effect of interphase on elastic behavior of multiwalled carbon nanotube reinforced composite, *Computational Materials Science*, Vol. 87, pp. 267-273, 2014.
- [16] M. H. Yas, M. Heshmati, Dynamic analysis of functionally graded nanocomposite beams reinforced by randomly oriented carbon nanotube under the action of moving load, *Applied Mathematical Modelling*, Vol. 36, pp. 1371-1394, 2012.
- [17] K. Anoukou, F. Zairi, M. Nait-Abdelaziz, A. Zaoui, T. Messager, J. M. Gloaguen, On the overall elastic moduli of polymer-clay nanocomposite materials using a self-consistent approach. Part I: Theory, *Composites Science and Technology*, Vol. 71, pp. 197-205, 2011.
- [18] S. Herasati, L. C. Zhang, H. H. Ruan, A new method for characterizing the interphase regions of carbon nanotube composites, *International Journal of Solids and Structures*, Vol. 51, pp. 1781-1791, 2014.
- [19] S. Boutaleb, F. Zairi, A. Mesbah, M. Nait-Abdelaziz, J. M. Gloaguen, T. Boukharouba, J. M. Lefebvre, Micromechanics-based modelling of stiffness and yield stress for silica/polymer nanocomposites, *International Journal of Solids and Structures*, Vol. 46, pp. 1716-1726, 2009.
- [20] K. Xiao, L. Zhang, Effective separation and alignment of long entangled carbon nanotubes in epoxy, *Journal of Materials Science*, Vol. 40, pp. 6513-6516, 2005.
- [21] B. S. Fralick, E. P. Gatzke, S. C. Baxter, Three-dimensional evolution of mechanical percolation in nanocomposites with random microstructures, *Probabilistic Engineering Mechanics*, Vol. 30, pp. 1-8, 2012.
- [22] K. Li, X. L. Gao, A. K. Roy, Micromechanical modeling of viscoelastic properties of carbon nanotube-reinforced polymer composites, *Mechanics of Advanced Materials and Structures*, Vol. 13, pp. 317-328, 2006.
- [23] J. S. Snipes, C. T. Robinson, S. C. Baxter, Effects of scale and interface on the three-dimensional micromechanics of polymer nanocomposites, *Journal of Composite Materials*, Vol. 45, pp. 2537-2546, 2011.
- [24] M. M. Aghdam, D. J. Smith, M. J. Pavier, Finite Element Micromechanical Modelling of Yield and Collapse Behaviour of Metal Matrix Composites, *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, Vol. 48, No. 3, pp. 499-528, 2000.
- [25] M. J. Mahmoodi, M. M. Aghdam, Damage analysis of fiber reinforced Ti-alloy subjected to multi-axial loading—A micromechanical approach, *Materials Science and Engineering A*, Vol. 528, No. 27, pp. 7983-7990, 2011.
- [26] R. Haj-Ali, J. Aboudi, Nonlinear micromechanical formulation of the high fidelity generalized method of cells, *International Journal of Solids and*



شکل 16 اثر سطوح مختلف تنش بر رفتار خزشی نانوکامپوزیت با توزیع اتفاقی نانوذرات

دارای خواص متفاوت از آن پلیمر در سایر نقاط است، همان حجمی نماینده نانوکامپوزیت شامل سه فاز نانوذرات، زمینه پلیمری و فاز میانی بین فاز تقویت و زمینه، در نظر گرفته شد. به منظور مدل‌سازی توزیع اتفاقی نانوذرات در زمینه پلیمری، همان حجمی نماینده به  $C \times r \times h$  نانوسلول مکعبی در سه بعد گسترش یافت. شرایط اتصال کامل بین اجزای تشکیل دهنده همان حجمی برقرار شد. برای بررسی خواص ترمو-الاستیک و ویسکوالاستیک، فاز میانی به ترتیب به‌عنوان یک ماده الاستیک و ویسکوالاستیک خطی در نظر گرفته شد. تطابق بسیار خوبی بین نتایج پیش‌بینی شده با استفاده از مدل میکرومکانیکی حاضر با داده‌های تجربی یافت شد. نتایج شبیه‌سازی میکرومکانیکی مشخص کرد که شدت اثر فاز میانی بر خواص ترمو-الاستیک نانوکامپوزیت با کوچکتر شدن اندازه نانوذرات بیشتر می‌شود. در واقع دلیل اصلی بهبود خواص ترمو-الاستیک نانوکامپوزیت با کوچکتر شدن اندازه نانوذرات، افزایش تأثیر فاز میانی است. با استفاده از اصل تناظر بین مسأله ویسکوالاستیسیته در حوزه زمان و الاستیسیته خطی در حوزه فرکانس، خواص مؤثر ویسکوالاستیک نانوکامپوزیت مورد مطالعه قرار گرفت. بدین منظور از تبدیل انتگرالی لاپلاس-کارسون استفاده شد. با استفاده از مدل میکرومکانیکی ارائه شده، اثرات اندازه نانوذرات سیلیکا و تغییر خواص فاز میانی بر رفتار نانوکامپوزیت با توجه به توزیع منظم و اتفاقی نانوذرات بررسی شدند. نتایج نشان داد که برای خواص ویسکوالاستیک فاز میانی یک مقدار آستانه‌ای وجود دارد که تغییرات نرمی خزشی نانوکامپوزیت بعد از این مقدار ویژه بسیار کم است. همچنین نتایج مدل‌سازی میکرومکانیکی نشان داد که با کاهش اندازه نانوذرات نرمی خزشی نانوکامپوزیت به دلیل افزایش تأثیر فاز میانی کاهش می‌یابد. رفتار خزشی نانوکامپوزیت متشکل از نانوذرات سیلیکا درون زمینه‌ی پلی‌آمیدی، تحت سطوح مختلف تنش مورد بررسی قرار گرفت.

## 8- مراجع

- [1] H. Liu, L. C. Brinson, Reinforcing efficiency of nanoparticles: A simple comparison for polymer nanocomposites, *Composites Science and Technology*, Vol. 68, pp. 1502-1512, 2007.
- [2] M. M. Shokrieh, Z. Shokrieh, S. M. Hashemianzadeh, Modeling of stiffness of graphene/epoxy nanocomposites with randomly distributed graphene using a combined molecular dynamics-micromechanics method,

- [30] L. Yan, *Synthesis and properties of PI/SiO<sub>2</sub> nanocomposite films*, PhD Thesis, Beijing; 2004.
- [31] F. Ashenai Ghasem, I. Ghasemi, S. Daneshpayeh, Mechanical and thermal properties of nanocomposites based on polypropylene/linear low density polyethylene/Titanium dioxide, *Modares Mechanical Engineering*, Vol. 14, No. 3, pp. 103-109, 2014 (In Persian)
- [32] E. Kontou, G. Anthoulis, The effect of silica nanoparticles on the thermomechanical properties of polystyrene. *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 105, pp. 1723–1731, 2007.
- Structures*, Vol. 46, No. 13, pp. 2577-2592, 2009.
- [27] J. Aboudi, Micromechanical analysis of composites by the method of cells, *Applied Mechanics Reviews*, Vol. 42, No. 7, pp. 193-221, 1989.
- [28] C. Donolato, Analytical and numerical inversion of the Laplace-Carson transform by a differential method, *Computer Physics Communications*, Vol. 145, pp. 298–309, 2002.
- [29] Z. Wang, J. Lu, Y. Li, S. Y. Fu, S. Jiang, X. Zhao, Studies on thermal and mechanical properties of PI/SiO<sub>2</sub> nanocomposite films at low temperature, *Composites: Part A*, Vol. 37, pp. 74–79, 2006.

Archive of SID