

# بهبود خواص حرارتی ابرعایق چندلایه بر پایه ایروژل نووالاک

پژوهش‌های کاربردی

مهندسی شیمی- پلیمر

بابک ولی‌پور گودرزی، احمدرضا بهرامیان\*

تهران، دانشگاه تربیت مدرس، دانشکده مهندسی شیمی، گروه مهندسی پلیمر، صندوق پستی ۱۱۴-۱۴۱۱۵

فصلنامه علمی - پژوهشی بین‌رشته‌ای

سال دوم، شماره ۱، نسخه ۱،

بهار ۱۳۹۷، صفحه ۱۸-۳

## چکیده

### واژه‌های کلیدی

عابرعایق‌های چندلایه  
ایروژل پلیمری  
جداکننده نانو ساختار  
لایه بازتابشی

در بین مواد بشرساخت، ایروژل دارای کمترین ضریب هدایت حرارتی است. کمترین میزان هدایت حرارتی که ایروژل می‌تواند داشته باشد، معادل هدایت حرارتی گاز هوا،  $0.021 \text{ W/mK}$  است. در برخی کاربردها، هدایت حرارتی بسیار کمتری مورد نیاز است. در این تحقیق از ایروژل نووالاک به عنوان جداکننده در طراحی و ساخت ابرعایق چندلایه با صفحات بازتابشی آلومینیوم استفاده شده است. عملکرد این عایق‌ها به شدت به چگالی، تخلخل و ابعادحفرات جداکننده‌های ایروژل و همچنین تعداد لایه در واحد ضخامت کل عایق چندلایه وابسته است. در این تحقیق به منظور کاهش هدایت حرارتی موثر عایق‌های چندلایه، دو متغیر چگالی جداکننده ایروژل و نسبت تعداد لایه در ضخامت عایق (چگالی لایه)، برای شرایط مرزی دمایی  $25^\circ\text{C}$  تا  $200^\circ\text{C}$  مورد بررسی قرار گرفته است. در ابتدا، با بررسی تاثیر تغییرات چگالی ایروژل نووالاک بر هدایت حرارتی، ایروژل نووالاک با چگالی  $3 \text{ g/cm}^3$  به عنوان بهترین جداکننده در عایق چندلایه انتخاب شد، و در بخش بعدی، نسبت  $25$  لایه در هر سانتی متر از ضخامت عایق به عنوان بهترین چگالی لایه انتخاب شد. در نهایت با ساخت عایق چندلایه بر اساس این نتایج، عایق با ضریب هدایت حرارتی موثر حدود  $5 \times 10^{-4} \text{ W/mK}$  بدون اعمال خلا در لایه جداکننده حاصل شد.

\*مسئول مکاتبات:

abahramian@modares.ac.ir

## ۱ مقدمه

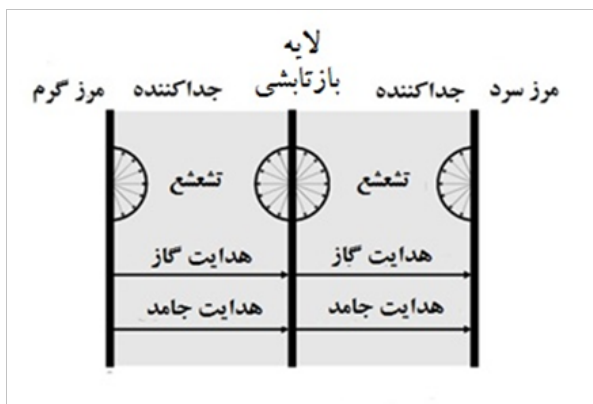
جلوگیری از اتلاف انرژی یکی از چالش‌های پیش‌رو برای بهبود سطح کیفیت زندگی است. امروزه ابر عایق‌های چند لایه (Multilayer Super Insulator) در انواع مختلف، با توجه به نوع ساخت و مواد به کار رفته در آن، کاربردهای فراوانی در صنایع مختلف از جمله صنایع هوا فضا، پتروشیمی، ساختمان و ... دارند. پیشرفت و بهبود عملکرد این ابر عایق‌ها از نظر ضخامت، عملکرد، هزینه و کارایی، موضوع بسیاری از پژوهش‌های روز دنیا است. در چند سال اخیر این عایق‌ها از مهمترین زمینه‌های تحقیقاتی ناسا (National Aeronautics and Space Administration (NASA) برای پیش‌برد اهداف سامانه‌های لازم برای سفرهای طولانی مدت فضایی بوده است. به طور مشخص، برای افزایش کارایی عایق‌های کپسول‌های سوختی برودتی (Cryogenic)، برای مدت زمان زیاد نگهدای گازهای سوختی در دمای ثابت، آزمون‌های زیادی صورت گرفته، و استفاده از ابرعایق‌های چندلایه توسعه زیادی یافته است.

این عایق‌های چندلایه، از لایه‌های بازتابشی و جداکننده‌های متخلخل بین آنها تشکیل شده است. شکل ۱ نمایی از ساختار یک عایق چندلایه و اجزای آن را نشان می‌دهد.

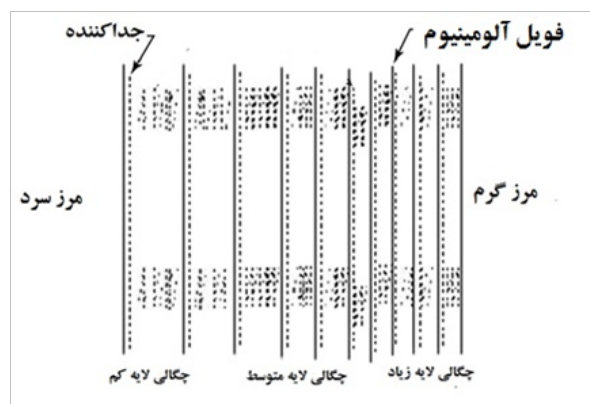
همان‌طور که در شکل ۲ دیده می‌شود، سه نوع کلی انتقال حرارت تشعشعی، انتقال حرارتی هدایتی گاز و جامد در عایق‌های چند لایه رخ می‌دهد [۲]. ضمن این که معمولا ایزول‌های نانو ساختار به عنوان جداکننده در ساخت عایق استفاده می‌شوند، که در آنها هدایت حرارت جابه‌جایی بسیار ناچیز خواهد بود، چرا که در ساختارهایی با حفرات نانومتری، فضایی که گاز در آن قرار دارد از پویش آزاد متوسط گازها کمتر بوده، و عملا از جابه‌جایی گاز جلوگیری کرده، یا این که درون آنها خلا ایجاد می‌شود تا انتقال حرارت جابه‌جایی کاملا حذف شود. اما ایجاد خلا از نظر پیچیدگی و هزینه، چندان قابل توجیه نیست.

جنس هر لایه بازتابشی از موادی انتخاب می‌شوند که قابلیت بازتاب بالایی داشته و از عبور فوتون‌های انرژی در ضخامت عایق جلوگیری کنند. به همین دلیل، لایه‌های بازتابشی باید به گونه‌ای انتخاب شوند که علاوه بر بازتاب خوب انرژی تشعشعی، مسائل اقتصادی برای آن در نظر گرفته شود. به همین منظور، استفاده از فویل آلومینیوم بسیار رایج است.

در این پژوهش، تاثیرات چگالی ایزول نووالای جداکننده و چگالی لایه عایق چندلایه بر هدایت حرارتی موثر کل عایق چندلایه، در بازه دمایی کاربردی بین  $25^{\circ}\text{C}$  تا  $200^{\circ}\text{C}$  بررسی می‌شود. در این تحقیق



شکل ۲ نمایی کلی از انواع انتقال حرارت در عایق چندلایه [۲]



شکل ۱ ساختار و اجزای عایق چندلایه [۱]

چگالی بر انتقال حرارت هدایتی فاز جامد، و همچنین مجموع انتقال حرارت هدایتی فاز گاز و بین گاز-جامد، در یک چگالی مشخص، کمینه هدایت حرارتی در ایروژل نووالاک احراز خواهد شد. البته این چگالی بهینه، تحت تاثیر درجه حرارت مرز دمایی گرم و سرد متفاوت بوده و همچنین در بازه‌های دمایی خیلی بالا یا خیلی پایین، ممکن است یکی از انتقال حرارت‌های هدایتی فاز گاز یا جامد، غالب باشد، به عبارتی، ممکن است در محدوده چگالی قابل سنتز برای ایروژل، روند انتقال هدایت حرارتی کل (مجموع فاز گاز و جامد) کاملاً صعودی و یا کاملاً نزولی بوده و چگالی بهینه محاسباتی در محدوده‌ای واقع شود، که ایروژل قابل سنتز نباشد. که در آن صورت چگالی مطلوب، کمترین یا بیشترین چگالی قابل سنتز خواهد بود.

## ۲ تجزیه

### ۱-۲ مواد

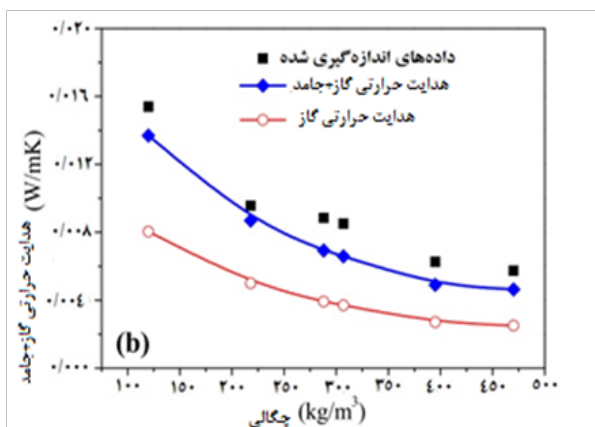
در این پژوهش از رزین فنولی از نوع نووالاک با نام تجاری IP ۵۰۲ ساخت شرکت رزیتان حاوی ۸-۹٪ وزنی هگزامین (هگزا متیلن تترا آمین) به عنوان ماده اولیه برای ساخت ژل استفاده شد. علت استفاده از ایروژل

سعی بر آن است تا با انتخاب صحیح متغیرها، کارایی حرارتی عایق چندلایه با ضخامت کم بهبود یافته، و عایقی چندلایه با ضخامت حداکثر ۱ cm، به هدایت حرارتی در مرتبه  $10^{-2}$  W/mK ابرسد. این در حالی است که در پژوهش‌های قبلی، صرفاً به افزایش ضخامت و یا افزودن تعداد لایه به طور مستقل اکتفا می‌شده که به ضخامت‌های بالا برای کارایی حرارتی لازم می‌انجامید.

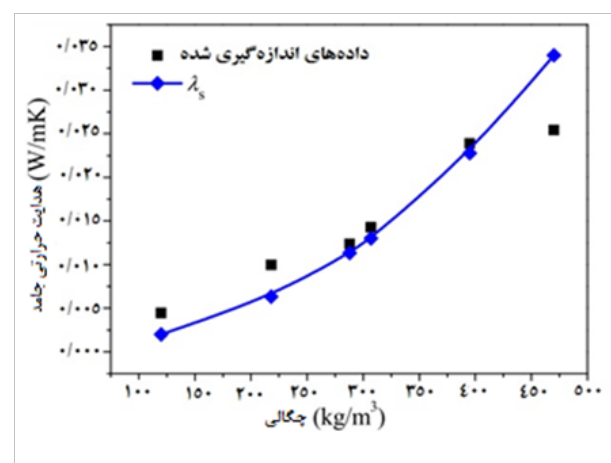
### ۱-۱ بررسی تاثیر ایروژل نووالاک جداکننده

برای بهبود عملکرد عایق، باید اثر تغییر ساختار ایروژل از نظر تخلخل و چگالی، روی خواص حرارتی جداکننده نانو ساختار بررسی شود. به صورت نظری طبق نمودار کیفی شکل ۳، با افزایش چگالی، درصد حجمی از ایروژل، که از ماز جامد تشکیل شده، بیشتر می‌شود، که بر اثر آن هدایت حرارتی جامد در ایروژل بیشتر خواهد شد. از طرفی با افزایش چگالی و کوچک‌تر شدن حفرات، مطابق شکل ۴ هدایت حرارتی بین گاز و جامد کاهش خواهد یافت [۳].

چگالی را می‌توان به نوعی نماینده ساختار کلی ایروژل نووالاک نانو ساختار در نظر گرفت. با تاثیر متضاد



شکل ۴ تغییرات هدایت حرارتی گاز و گاز-جامد با تغییرات چگالی در ایروژل [۳].



شکل ۳ تغییرات هدایت حرارتی جامد با تغییرات چگالی در ایروژل [۳].

آزمایشگاهی پلاستیکی دردار ریخته شده، و در اتوکلاو (دمای °C ۱۲۰ و فشار ۱۵ bar) قرار داده شدند. قبل از قرار دادن آن‌ها درون اتوکلاو، ابتدا مقدار حدود ۵۰ گرم از حلال ۲- پروپانول خالص درون اتوکلاو ریخته شد. با این کار محیط اتوکلاو از بخار حلال اشباع می‌شود. با اشباع محیط اتوکلاو از بخار حلال در دمای °C ۱۲۰ درجه سانتیگراد، فشار داخل اتوکلاو تا ۱۵ bar افزایش می‌یابد. با افزایش فشار محیط از فشار اتمسفر تا ۱۵ bar، نقطه جوش ۲ پروپانول تا °C ۲۴۰ افزایش می‌یابد. بنابراین در دمای °C ۱۲۰، سنتز ایروژل هیچ گونه تبخیر حلال رخ نداده، و حباب درون نمونه ایجاد نمی‌شود. پس از این مراحل، درب اتوکلاو بسته شده و با استفاده از O-رینگی از جنس لاستیک اکریلو نیتریل بوتادین کاملاً آب‌بند شد. سپس، اتوکلاو درون آونی که پیش‌تر دمای آن به مقدار °C ۱۲۰ رسیده بود، قرار داده شد و برای مدت زمان ۵ ساعت در این دما درون آن نگه داشته شد. پس از این زمان، آون خاموش شد و اجازه داده شد که اتوکلاو درون آون به تدریج تا رسیدن به دمای محیط خنک شود. پس از خنک شدن اتوکلاو درب آن باز و نمونه‌ها از درون آن‌ها خارج شد. سپس

نووالاک این است که در بین مواد پلیمری گرماسخت، رزین نووالاک علاوه بر هدایت حرارتی پایین، دارای چگالی شبکه‌های بیشتری است، که به ایروژل استحکام بیشتری می‌بخشد. بنابراین، با خشک کردن محیطی ژل، ساختار شبکه بهم نمی‌ریزد. به منظور تهیه سل‌های آلی (organic sol) از حلال ۲- پروپانول ساخت شرکت دکتر مجلی (ایران) با درجه خلوص بالاتر از ۹۰ درصد استفاده شد. برای تهیه لایه‌های بازتاب دهنده، از فویل‌های آلومینیوم با ضخامت ۰/۰۰۶ mm موجود در بازار استفاده شده است.

## ۲-۲ دستگاه‌ها

در این پژوهش، از تجهیزاتی که در جدول ۱ آورده شده است، برای ساخت و شناسایی ایروژل‌های تهیه شده استفاده شد.

## ۲-۳ روش ساخت

### ۲-۳-۱ ساخت ایروژل نووالاک

ابتدا محلول‌هایی با غلظت‌های ۱۰، ۱۲/۵، ۱۵ و ۲۰ درصد وزنی از پودر نووالاک در حلال ۲- پروپانول با استفاده از هم‌زن مکانیکی در دمای °C ۴۵ و در مدت زمان ۱۵ دقیقه تهیه شدند. سپس، این محلول‌ها در لوله‌های

جدول ۱ تجهیزات مورد استفاده در پژوهش

نام دستگاه	مدل و شرکت سازنده	نوع کاربرد
تخلخل‌سنج جیوه‌ای	شرکت Thermo Finnigan ایتالیا	بررسی اندازه تخلخل و توزیع اندازه تخلخل
میکروسکوپ الکترونی	شرکت Hitachi ژاپن مدل S-4160	بررسی ریزساختار اروژل‌های ساخته شده
اتوکلاو	دانشگاه تربیت مدرس	پلیمر شدن در محیط اشباع از بخار حلال
ثبت کننده داده	ساخت کشور هنگ‌کنگ	رسم نمودار توزیع دمایی نمونه‌ها
گرماسنجی پویسی تفاضلی	آلمان NETZSCH شرکت DSC 200F 3 240-20-0648L	تعیین دمای مناسب برای انجام پلیمر شدن
دما وزن سنجی	سوئیس Mettler	تعیین شرایط مناسب برای پیرولیز

مرحله‌ی خشک‌کردن ژل‌ها به روش محیطی صورت گرفت [۴]. به منظور ممانعت از ترک خوردن نمونه‌ها در اثر خروج سریع مقدار زیادی حلال، در ابتدا نمونه‌ها برای مدت زمان حدود ۲۴ ساعت درون شرایط محیطی خشک شدند و سپس، به منظور انجام هم‌زمان دو فرآیند تکمیل واکنش‌های پخت و خروج حلال نمونه‌ها درون آون با دمای  $90^{\circ}\text{C}$  برای ۲۴ ساعت و  $120^{\circ}\text{C}$  برای ۲۴ ساعت قرار داده شدند.

### ۲-۳-۲ ساخت ابرعایق چندلایه

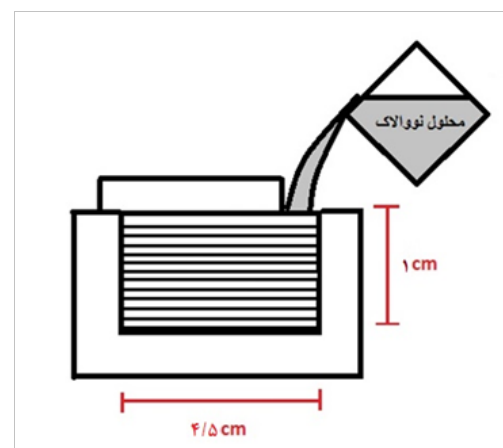
با توجه به آنچه که در جدول ۳ آورده شده، چگالی کمتر ابروژل نووالاک جداکننده برای محدوده دمایی  $25^{\circ}\text{C}$  تا  $200^{\circ}\text{C}$  مناسب تر است، چرا که در این محدوده دمایی، هدایت حرارتی فاز جامد، غالب است. با توجه به این موضوع برای ساخت عایق چندلایه، از کمترین چگالی ممکن ابروژل، استفاده می‌شود. در این جا با توجه به شکننده بودن بسیار نمونه  $10\%$ ، از نمونه  $12/5\text{ wt}\%$  نووالاک در حلال ۲-پروپانول که دارای چگالی مطلوب (حدود  $1\text{ g/cm}^3$ ) است برای تهیه ژل استفاده شد. سپس در چگالی لایه‌های مختلف برای ضخامت  $1\text{ cm}$  عایق‌های چند لایه به شرح ذیل ساخته شدند. ابتدا قالبی از شیشه به عمق  $1\text{ cm}$  و طول و عرض

### ۳ نتایج و بحث

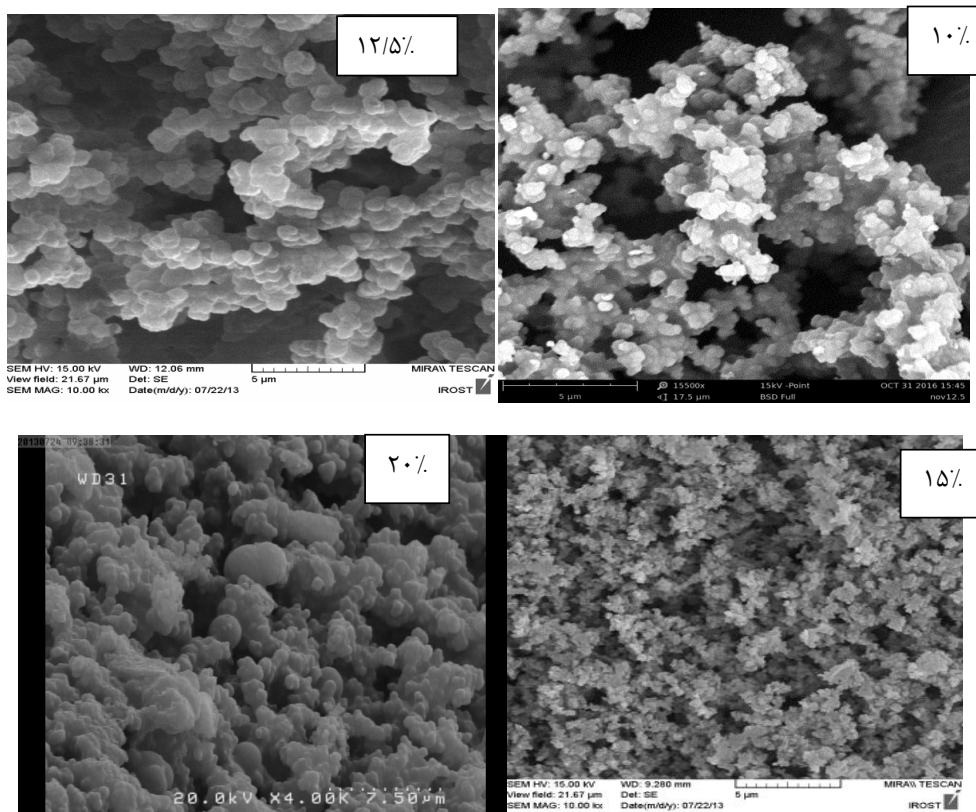
#### ۳-۱ ریخت شناسی و ریزساختار

از آزمون SEM برای ریخت‌شناسی کلی ساختار ابروژل‌ها استفاده شد. در شکل ۶ نتایج این آزمون نشان داده شده است. با توجه به تصاویر شکل ۶، و در نظر گرفتن مقیاس شده است. زیرا، مبنای واکنش سل-ژل برای ایجاد ساختار کلوییدی، جدایی فازی پلیمر اولیه از حلال و تشکیل هسته اولیه رشد کلویدها است. زمانی که غلظت اولیه مونومر افزایش می‌یابد، هسته‌های اولیه تشکیل دهنده کلویدها افزایش می‌یابد. با افزایش قابل توجه هسته‌های اولیه، اندازه کلویدها کاهش می‌یابد. در شکل ۷ با استفاده از نرم افزار Imagej میانگین قطر ذرات و توزیع آن‌ها در هر درصد از نووالاک مشخص شده است.

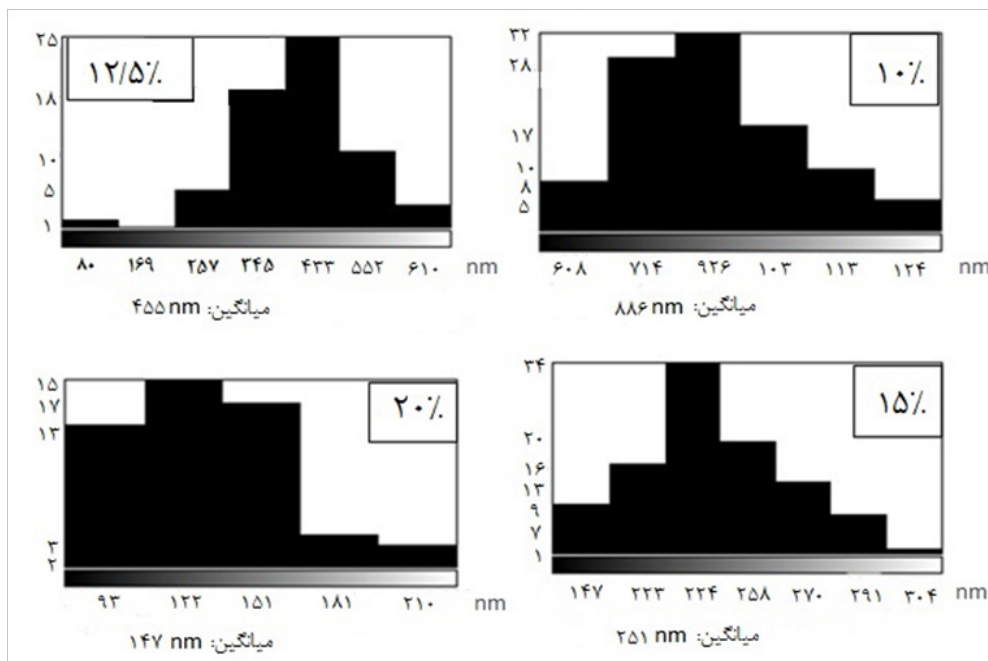
نمونه‌های ساخته شده برای ارزیابی چگالی و تخلخل به شکل استوانه در ابعاد حدود قطر  $2/5\text{ cm}$  و ارتفاع  $1\text{ cm}$  برش داده شدند. چگالی (ظاهری) و تخلخل نمونه‌ها و میانگین آن‌ها در جدول ۲ تنظیم شده است. از هر ترکیب ۳ الی ۴ نمونه تهیه شده و براساس اندازه گیری حجم و وزن، چگالی به دست آمده، و براساس تفاوت حجم نمونه قبل و بعد از مرحله خشک کردن، درصد جمع شدگی محاسبه شده است. همچنین از طریق رابطه ۱ تخلخل محاسبه می‌شود.



شکل ۵ نمای کلی ساخت عایق چندلایه، با استفاده از قالب شیشه‌ای



شکل ۶ ریز ساختار اروزل نووالاک تهیه شده از درصدهای مختلف نووالاک در محلول سل اولیه



شکل ۷ توزیع میانگین قطر ذرات اروزل تهیه شده از سل اولیه با درصدهای مختلف نووالاک

متخلخل صحبت می‌شود، ارائه تعریف دقیق و خاصی برای اندازه حفره بسیار مشکل است، زیرا با نگاه به تعریف ایوپاک (IUPAC)، حفره را فضایی بین دو دیواره روبه روی هم در نظر می‌گیرد که این تعریف مناسبی برای این گونه از مواد نیست، زیرا در مواد آبر متخلخل مفهومی به عنوان دیواره کاربرد ندارد. از طرف دیگر

(۱)  

$$\phi = 1 - \frac{\rho}{\rho_0}$$
 در این معادله  $\rho$  چگالی ایروژل، و  $\rho_0$  چگالی رزین خالص بدون تخلخل است. برای رزین نووالاک خالص  $\rho_0$  برابر با  $1/315 \text{ g/cm}$  است باید در ابتدا دقت کرد، زمانی که در مورد مواد آبر

جدول ۲ چگالی و تخلخل نمونه‌های ایروژل

میانگین تخلخل (%)	میانگین چگالی (%)	میانگین چگالی ( $\text{g/cm}^3$ )	میانگین جمع شدگی (%)	جمع شدگی (%)	ارتفاع (cm)	قطر (cm)	حجم ( $\text{cm}^3$ )	وزن (g)	ردیف	درصد نووالاک در سل اولیه
۹۳/۶۶	۰/۰۷۶	۰/۰۶۸	۱۳	۹/۹۲۶	۱/۱۱	۲/۴۳۲	۵/۱۵۴	۰/۳۵	۱	۱۰٪
		۰/۰۸۲		۱۷/۷۰۴	۱/۱۴	۲/۲۲۲	۴/۴۱۸	۰/۳۶		
		۰/۰۷۹		۱۱/۱۱۱	۱/۰۳	۲/۴	۴/۶۵۲	۰/۳۷		
		۰/۰۷۵		۱۳/۲۵۹	۱/۱۴۲	۲/۳۴۲	۴/۹۱۷	۰/۳۷		
۹۱/۲۳	۰/۱۰۵	۰/۱۰۲	۱۴/۹۶۳	۱۶/۲۲	۱/۲۵	۲/۲۶۲	۵/۰۲۰	۰/۵۱	۲	۱۲/۵٪
		۰/۱۱۲		۲۵/۹۳	۱/۲۲۲	۲	۵/۸۳۷	۰/۴۳		
		۰/۱۰۲		۱۳/۷۰۴	۱/۲۴	۲/۳۳	۵/۲۸۴	۰/۵۴		
۸۸/۲۱	۰/۱۴۱	۰/۱۴۴	۱۲/۵۹۲	۱۲/۵۹۳	۱/۲۵۶	۲/۳۶	۵/۴۹۱	۰/۷۹	۳	۱۵٪
		۰/۱۴۳		۱۴/۰۷۴	۱/۲۴۲	۲/۳۲	۵/۲۴۸	۰/۷۵		
		۰/۱۳۸		۱۱/۱۱۱	۱/۲۵۴	۲/۴	۵/۶۷۰	۰/۷۸		
۸۸/۸۵	۰/۱۹۴	۰/۱۷۹	۱۲	۱۸/۳۷	۱/۳۳۴	۲/۲۰۴	۵/۰۸۷	۰/۹۱	۴	۲۰٪
		۰/۲۰۳		۱۵/۹۲۶	۱/۳۹	۲/۲۷	۵/۶۲۳	۱/۱۴		
		۰/۱۸۹		۱۳/۷۰۴	۱/۳	۲/۳۳	۵/۵۴۰	۱/۰۵		
		۰/۲۰۴		۱۸/۵۱۹	۱/۲۹	۲/۲	۴/۹۰۱	۱		

حجم ناشی از نفوذ جیوه به داخل حفرات ساختار متخلخل چشم پوشی می شود و نتایج تخلخل سنجی بدون هیچ گونه اصلاحی گزارش می شود.

معادله واشبورن را فقط در حالتی می توان استفاده کرد که تغییر حجم ثبت شده طی افزایش فشار فقط ناشی از نفوذ جیوه به ساختار متخلخل ماده باشد. ولی زمانی که بعضی مواد نظیر مواد آبر متخلخل آلی و غیر آلی که از مقاومت فشاری پایینی برخوردار هستند در آزمون تخلخل سنجی جیوه ای قرار داده می شوند، به جای نفوذ جیوه به داخل حفرات، ساختار ماده خرد شده و فشرده تر می شود. در این موارد نمی توان از معادله واشبورن برای بررسی داده های تخلخل سنجی استفاده کرد. ساختار جامد مواد آبر متخلخل از ذرات انبوهه تشکیل شده است که با اتصال به یک دیگر شبکه سه بعدی یک پارچه ای را می سازند. در ساختار مواد آبر متخلخل حفرات بسیار به هم مرتبط هستند و دیواره این حفرات همان انبوهه های به هم متصل شده تعریف می شود [۶]. زمانی که ماده ای با مشخصات نظیر مواد آبر متخلخل تحت فشار ایزواستاتیک آزمون تخلخل سنجی جیوه ای قرار می گیرند، به دلیل فروپاشی ساختار متخلخل فشرده تر شده و معادله مخصوصی برای تحلیل داده های تخلخل سنج جیوه ای مورد نیاز است.

در واقع با توجه به بررسی های صورت گرفته، اثبات شده است که زمانی که مواد آبر متخلخل تحت اثر فشار فشرده تر می شوند در فشارهای کمتر ابتدا فروپاشی در حفرات با اندازه بزرگتر اتفاق می افتد. با توجه به تحقیقات پیرارد (Pirard) [۵]، [۷] نشان داده شده است که در حین فرایند فشرده شدن، فشار ایزواستاتیک جیوه باعث فروپاشی حفراتی می شوند که اندازه آنها بیش از مقدار معین  $L$  است. این مقدار معین اندازه حفره تابعی از فشار ایزو استاتیک جیوه  $P$  است و حفراتی که اندازه آنها کمتر از این حد باشد بدون تغییر باقی می ماند. رابطه بین فشار ایزو استاتیک  $P$  و اندازه حفره به صورت معادله (۳) نشان داده می شود.

زمانی ما می توانیم از مفهوم اندازه حفره نظیر قطر یا شعاع استفاده کنیم که حفرات دارای یک شکل هندسی نظیر استوانه، صفحه یا کره باشند. پس این دو مفهوم در مواد آبر متخلخل به کار برده نمی شود. ما در این تحقیق حفره را به عنوان اندازه به دست آمده از دو مفهوم منحنی نفوذ جیوه به داخل ساختار آبر متخلخل و طول انبوهه شکسته شده بر اثر فشار ایزو استاتیک جیوه بیان می کنیم. لازم به توضیح است که بنا بر طبقه بندی ارائه شده توسط آیوپاک، حفرات یک ماده متخلخل بر حسب اندازه در سه گروه میکرو حفرات (MicroPore) (با اندازه کمتر از ۲ نانومتر)، مزو حفرات (MesoPore) (با اندازه حفرات بین ۲ و ۵۰ نانومتر) و ماکرو حفرات (MacroPore) (با اندازه بزرگتر از ۵۰ نانومتر) طبقه بندی می شوند.

تخلخل سنج جیوه ای در حال حاضر روشی کارآمد برای شناسایی ساختار در مواد متخلخل است. این روش اطلاعاتی از اندازه حفرات و توزیع اندازه حفرات در اختیار قرار می دهد. به صورت کلی، اساس این دستگاه بر پایه فرضیه نفوذ جیوه به داخل حفرات کوچکتر با افزایش فشار است. با وجود این فرضیه بررسی داده های به دست آمده بر اساس معادله واشبورن (Washburn Equation) [۵] صورت می پذیرد.

$$r=(2\gamma \cos\theta)/P \quad (2)$$

در این معادله  $r$  شعاع حفره،  $P$ ، فشار وارده از طرف جیوه به منظور نفوذ به داخل حفرات،  $\gamma$ ، تنش سطحی جیوه که در حدود  $0.485 \text{ N/m}$  است و  $\theta$  زاویه تماس سطح منحنی جیوه با سطح غیر فلزی است که در حدود  $140^\circ$  درجه است.

در کاربردهای اخیر این روش دیده شده است که مواد متخلخل و یا غیر متخلخل تحت فشارهای بالا ناشی از جیوه به صورت الاستیک فشرده می شوند. برای به دست آوردن نتایج دقیق، باید تغییرات حجم ناشی از فشردگی از نتایج خام دستگاه کم شود. در مورد مواد متخلخل، معمولاً تغییر حجم ناشی از فشردگی الاستیک در مقایسه با تغییر



پیچیده که هر دو مکانیسم در فشار  $P_t$  معتبر است، می توان با برابر قرار دادن هر دو معادله در این فشار، مقدار  $k_f$  را به راحتی به دست آورد:

$$L_t = \frac{k_f}{P_t^{0.25}} = \frac{4\gamma \cos \theta}{P_t} \quad (5)$$

که در نتیجه مقدار  $k_f$  برابر است با:

$$k_f = \frac{4\gamma \cos \theta}{P_t^{0.75}} \quad (6)$$

از این روش برای اندازه گیری خواص الاستیک مواد سنتزی به روش سل-ژل مانند اروژل ها و زروژل ها [۸]، اروژل های سیلکاتی [۷] و کربن [۹] استفاده شده است. این روش پتانسیل خود را برای تحلیل دیگر مواد آبر متخلخل [۱۰] نیز به خوبی نشان داده است و روش کارآمدی به حساب می آید.

در جدول ۳ خواص نمونه های آبر متخلخل نووالاک آورده شده است. همان گونه که در جدول گزارش شده است، فشار انتقالی برای نمونه های با غلظت ۱۰، ۱۵ و ۲۰ درصد وزنی نووالاک در سل اولیه به ترتیب ۰/۲ MPa، ۰/۴۵ MPa و ۱/۵ MPa تعیین شده است. به دلیل خرد شدن نمونه ها حین آزمون تخلخل سنجی، وزن کردن و اندازه گیری ابعاد نمونه ها بعد از آزمون امکان پذیر نبوده، ولی با توجه به مشاهدات می توان اطمینان داشت که

$$L = k_f / P^{0.25} \quad (3)$$

با توجه به معادله اولر (euler equation) مقدار ثابت  $k_f$  را می توان از رابطه زیر به دست آورد:

$$k_f = \frac{d(n^2 \cdot \pi^2 \cdot E)^{0.25}}{2} \quad (4)$$

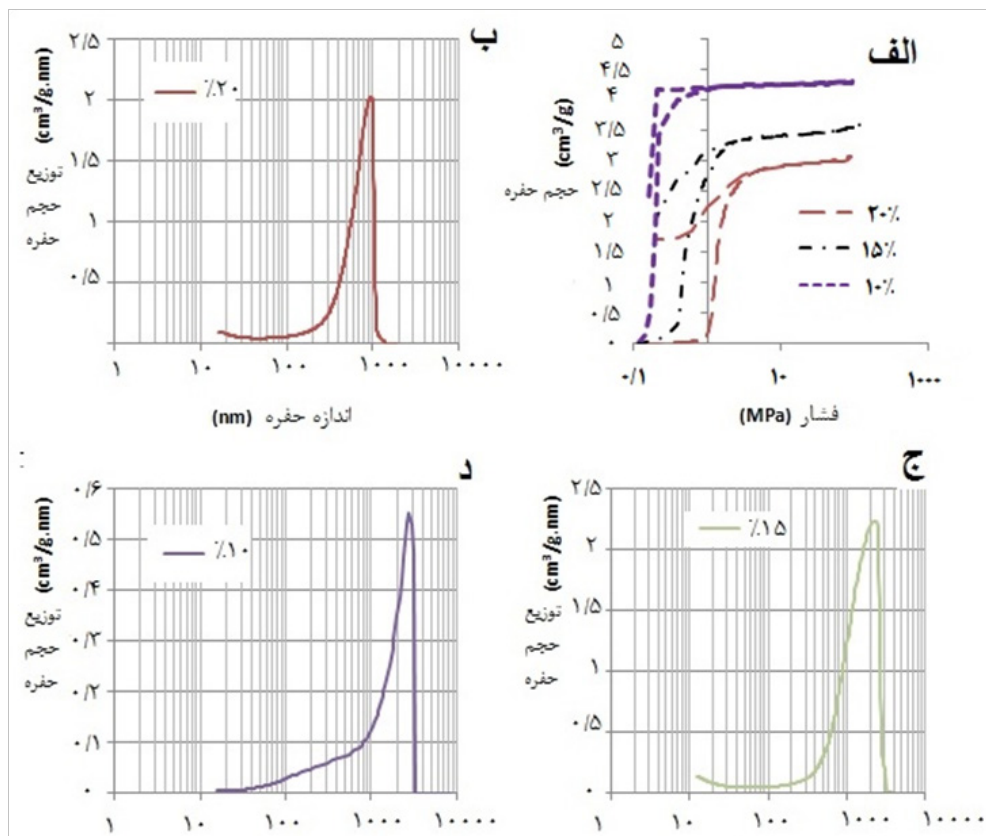
که  $E$  مدول یانگ انبوهه های تشکیل شده از ذرات،  $d$  ضخامت انبوهه ها و عدد صحیح  $n$  طرز قرارگیری این انبوهه ها در فضا را بیان می کنند. این سه پارامتر به راحتی و جدا از هم قابل تعیین نیستند و ثابت  $k_f$  به صورت تجربی برای هر ماده ای تعیین می شود. زمانی که ماده آبر متخلخل تحت آزمون تخلخل سنج جیوه ای قرار می گیرد هر دو مکانیسم تغییر حجم پشت سر هم اتفاق می افتد. ابتدا ماده تا رسیدن به فشار  $P_t$  تحت مکانیسم فروپاشی حفرات قرار می گیرد. بالای فشار  $P_t$  نفوذ جیوه به داخل حفرات کوچک باقی مانده از فشار مکانیسم فروپاشی اتفاق می افتد. مقدار فشار  $P_t$  به عنوان پارامتر مشخصه هر ماده تعیین می شود. برای تحلیل داده های تخلخل سنجی جیوه ای در هر بازه ای از فشار با توجه به مکانیسم غالب آن از معادله واشبورن (معادله ۲) و یا معادله فروپاشی (معادله ۳) استفاده می شود [۸]. با توجه به این رفتار

جدول ۳ خصوصیات نمونه های آبر متخلخل نووالاک

$k_f$ (nm MPa <sup>0.25</sup> )	$P_t$ (MPa)	$d$ ( $\mu$ m)	$\rho_b$ ( $\pm 0.020$ g/cm <sup>3</sup> )	نمونه (درصد نووالاک در سل اولیه)
4969	2/0	12/2	104/0	10%
2982	45/0	02/1	165/0	15%
1096	5/1	248/0	261/0	20%
388	6	108/0	312/0	25%
28	200	058/0	463/0	35%

با توجه به شکل ۷، با بالا رفتن درصد نئووالاک، توزیع اندازه حفرات کوچکتر شده است، در نمونه ۱۰٪ بیشترین حفرات در حدود ۳۰۰۰ nm توزیع شده است، در حالی که برای نمونه ۲۰٪، بیشترین حفرات در حدود ۱۰۰۰ nm توزیع شده است. بنابراین با توجه به شکل ۷ و ۸ می‌توان به این جمع بندی رسید که، با افزایش درصد نئووالاک و بالا رفتن چگالی، اندازه حفرات و همچنین اندازه ذرات ابروزل کوچکتر می‌شود. نتیجه ای که با توجه به سازکار تشکیل ابروزل از هسته‌های اولیه، مورد قبول است. چرا که با افزایش غلظت مونومر اولیه، هسته‌های اولیه تشکیل کلویید افزایش پیدا کرده، که با افزایش تعداد هسته‌های اولیه، ذرات کلوییدی کوچکتر شده، و با کوچکتر بودن ذرات کلوییدی، بیشتر به هم فشرده می‌شوند، و حفرات

مکانیسم نفوذ در فشارهای بالاتر از فشار انتقالی مکانیسم قابل قبول برای توضیح تغییرات حجم است. توزیع اندازه حفره به وسیله معادله فروپاشی پیرارد (معادله ۳) در فشارهای زیر فشار انتقالی و معادله نفوذی واشبورن (معادله ۲) در بالای فشار انتقالی تعیین می‌شود. با استفاده از این تحلیل‌ها، نمودار توزیع اندازه حفرات بر حسب اندازه حفره برای هر نمونه تعیین شده است که در شکل ۸، ب تا د نشان داده شده است.  $K_f$  ثابتی است که نماینده‌ای از سفتی و مقاومت جسم متخلخل در برابر فروپاشی است. این ثابت طبق جدول ۳ رابطه عکس با غلظت مونومر اولیه و فشار فروپاشی دارد. با توجه به رابطه ۴، هر چه که مدول جسم متخلخل و اندازه ذرات انبوهه آن بیشتر باشد، حفرات آن در فشار کمتری به فروپاشی و آستانه تخریب می‌رسند.



شکل ۸ بررسی ساختاری آبر متخلخل نئووالاک به وسیله تخلخل سنج جیوه‌ای (الف) داده های خام تخلخل سنج جیوه‌ای نمونه‌ها، حجم تخلخل بر حسب فشار ب تا د) توزیع اندازه حفرات نمونه‌های به ترتیب ۲۰٪، ۱۵٪ و ۱۰٪ وزنی نئووالاک در سل اولیه

در فضای کوچکتری تشکیل می‌شوند. با کوچک تر شدن ذرات ایروژل، انتظار می‌رود که تعداد ذرات ایروژل بیشتر شده و همچنین سطح ویژه ذرات بالاتر رود، که نتیجه آن، افزایش انتقال حرارت هدایتی فاز جامد است.

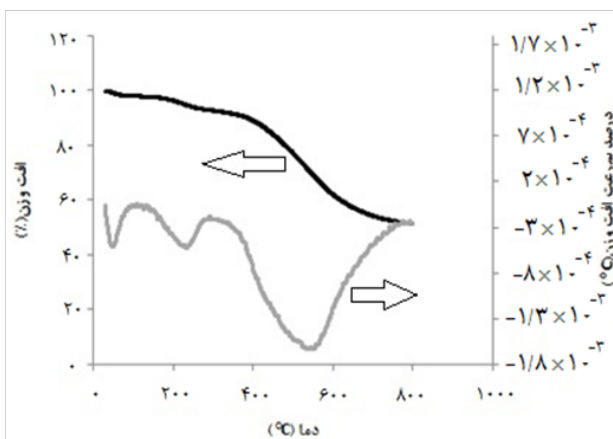
### ۲-۳ شرایط پخت و تخریب حرارتی رزین نووالاک

پیش از انجام آزمایش انتقال حرارت، باید اطمینان حاصل شود که نووالاک در محدوده دمایی  $25^{\circ}\text{C}$  تا  $200^{\circ}\text{C}$  دچار تخریب حرارتی نمی‌شود. بنا بر آنچه که در شکل ۹ مشاهده می‌شود، نتیجه آزمون گرماسنجی پوششی تفاضلی (DSC) نووالاک پخت نشده با سرعت حرارت دهی  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$  هیچ تغییری را در ناحیه  $200^{\circ}\text{C}$  نشان نمی‌دهد و به عبارتی اثری از تخریب دیده نمی‌شود. پیک‌های گرمای مشاهده شده نیز به واکنش‌های پخت رزین نووالاک و شبکه‌ای شدن آن نسبت داده می‌شوند. در این شکل، دمای شروع پخت رزین از حدود  $90^{\circ}\text{C}$  شروع می‌شود. همچنین دمای سنتز ایروژل‌ها  $120^{\circ}\text{C}$  انتخاب شده زیرا در این دما سرعت پخت متوسط و کم است. بنابراین بخار آب ناشی از واکنش تراکمی باعث تخریب ساختار ایروژل نمی‌شود.

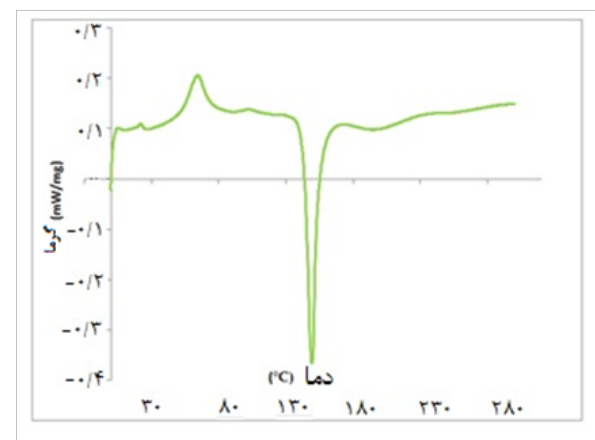
برای بررسی دقیق تر و اطمینان از این که تا دمای  $200^{\circ}\text{C}$  شکست پیوندها آغاز نمی‌شود، از آزمون TGA

### ۳-۳ کارایی حرارتی

برای این ارزیابی، دمای صفحه داغ روی دمای مرز گرم تنظیم می‌شود. این دما در هر مرحله از آزمون به ترتیب روی  $50^{\circ}\text{C}$ ،  $100^{\circ}\text{C}$ ،  $150^{\circ}\text{C}$  و  $200^{\circ}\text{C}$  قرار داده می‌شود. نمونه ایروژل (استوانه به قطر  $20\text{ mm}$  و ارتفاع  $5\text{ mm}$ ) روی سطح صفحه داغ قرار گرفته، و سطح دیگر نمونه در برابر هوای  $25^{\circ}\text{C}$  قرار می‌گیرد. اطراف نمونه، با نمد، عایق شده تا شرایط ایزوله باشد. حسگر درجه حرارت ثبت کننده داده روی سطح دیگر نمونه که رو



شکل ۱۰ منحنی TGA ایروژل نووالاک در محیط نیتروژن



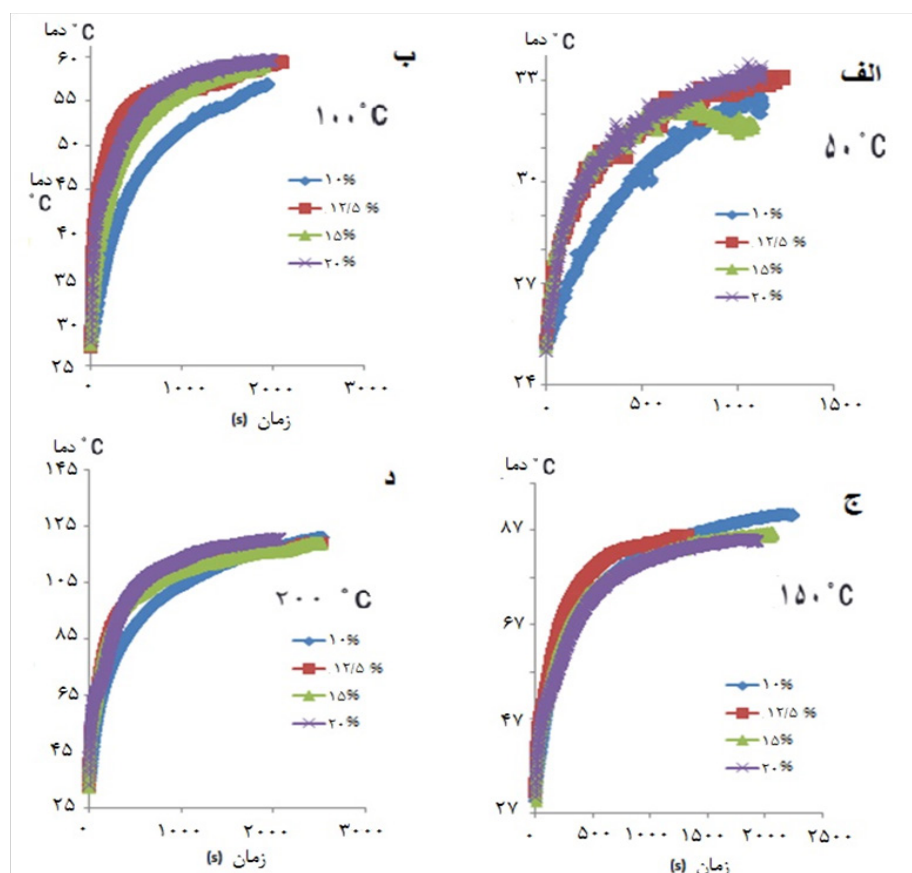
شکل ۹ منحنی DSC رزین نووالاک مصرفی در خلال پخت

$$\rho C p \frac{dT}{dt} = K \frac{\partial^2 T}{\partial X^2} \quad (7)$$

روند کلی نشان می‌دهد که در این محدوده، هر چه که ایروزل در چگالی کمتری ساخته شود، هدایت حرارتی کمتر خواهد بود. باید اشاره کرد که ساخت ایروزل در کمتر از چگالی ۱۰٪، عملاً مقدور نیست، چرا که شبکه رزین نووالاک تشکیل نشده و ژل ایجاد نمی‌شود. ایروزل تهیه شده از سل شامل ۱۰٪ وزنی نووالاک نیز از نظر ویژگی‌های فیزیکی بسیار ضعیف و شکننده است. به همین دلیل در تهیه عایق چندلایه از ایروزل سنتز شده از محلول سل اولیه حاوی ۱۲/۵

به هوا است، قرار داده شده و روی آن عایق می‌شود، تا فرض ایزوله برقرار باشد. با گذشت زمان، افزایش دما روی سطح نمونه ثبت می‌شود، که نتایج آن به صورت نمودار دما-زمان برای نمونه‌های مختلف به صورت شکل ۱۱ قابل مشاهده است.

حال با استفاده از نمودار دما-زمان، و روش محاسبه غیر پایدار تیلور [۱۱]، هدایت حرارتی موثر هر نمونه در بازه‌های دمایی مختلف محاسبه می‌شود. در این روش با داشتن دو توزیع دما در ضخامت مشخص نمونه به عنوان شرایط مرزی و حل معادله ۷، ضریب هدایت حرارتی موثر در شرایط انتقال محاسبه می‌شود.



شکل ۱۱ نمودار دما-زمان ایروزل‌ها در شرایط دمایی صفحه داغ الف (۵۰، ب) ۱۰۰، ج) ۱۵۰ و د) ۲۰۰ درجه سانتیگراد برای ایروزل‌های سنتز شده با ۱۰، ۱۲/۵، ۱۵ و ۲۰ درصد وزنی نووالاک در سل اولیه

جدول ۴ هدایت حرارتی موثر بر حسب (W/mK) نمونه‌های ابروژل در دماهای مختلف

نمونه(نووالاک در سل)دما	۱۰٪	۱۲/۵٪	۱۵٪	۲۰٪
۵۰°C	۰/۰۱۵	۰/۰۲۳	۰/۰۲۳	۰/۰۲۴
۱۰۰°C	۰/۰۱۴	۰/۰۲۳	۰/۰۲۴	۰/۰۲۹
۱۵۰°C	۰/۰۱۵	۰/۰۲۴	۰/۰۱۹	۰/۰۱۹
۲۰۰°C	۰/۰۱۷	۰/۰۲۷	۰/۰۳۱	۰/۰۳۳

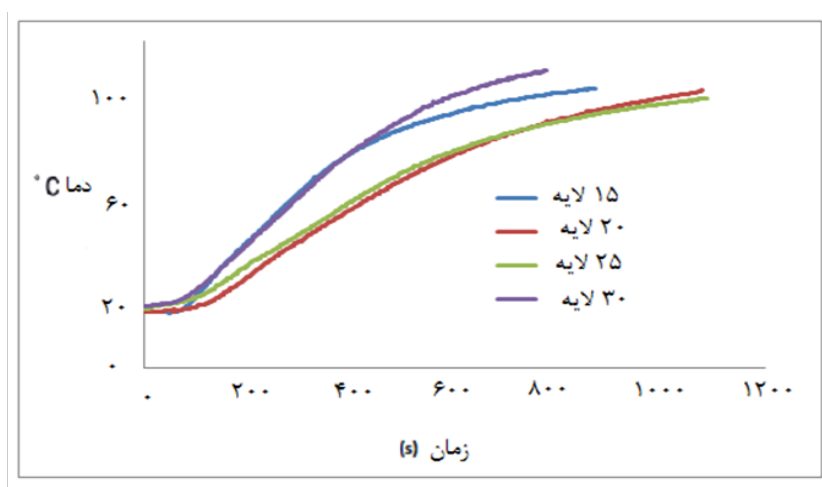
فرض ایزوله بودن برقرار باشد. سپس با حسگر دمای دیتالاگر تغییرات دمایی سطح رو به هوا ثبت می‌شود. نمودار دما-زمان در شکل ۱۲ نشان داده شده است. جداکننده این عایق‌های چند لایه، ابروژل ناشی از محلول سل شامل ۱۲/۵ درصد وزنی نووالاک است. با استفاده دوباره از روش تیلور [۱۱]، و نمودارهای دما-زمان، هدایت حرارتی موثر هر عایق محاسبه می‌شود. در شکل ۱۲ روند تغییرات هدایت حرارتی موثر آورده شده است. با توجه به شکل ۱۳، بین ۲۰ تا ۲۵ لایه در واحد ضخامت، برای عایق مطلوب ترین حالت برای ضریب هدایت حرارتی احراز می‌شود.

### نتیجه‌گیری

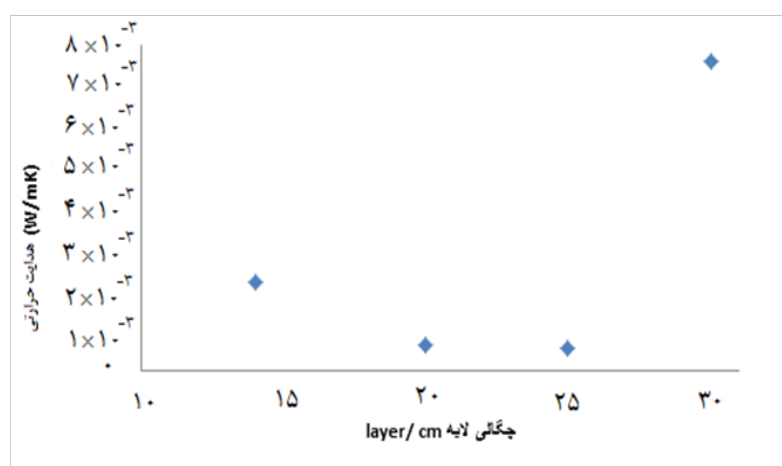
طبق آنچه که به لحاظ نظری انتظار می‌رود، به منظور کمتر کردن انتقال حرارت در عایق چند لایه، با توجه به شرایط مرزی دمایی، دو پارامتر چگالی ابروژل جداکننده و چگالی لایه، محدوده مطلوب مشخصی، با توجه به شرایط دمایی مرزی خواهند داشت. در این پژوهش، آزمون‌های عملی نشان دادند که تغییر چگالی ابروژل چه تاثیر اساسی بر ساختار و به دنبال آن بر انتقال حرارت مجموع گاز و جامد خواهد داشت، و برای شرایط مرزی دمایی ۲۵°C تا ۲۰۰°C، روند هدایت حرارتی ویژه ابروژل نووالاک، تا محدوده چگالی ۰/۳۰۷۶g/cm<sup>۳</sup> (کمترین حد قابل ساخت) روند نزولی دارد. این به این معنی است، که هر چه غلظت نووالاک در سل اولیه ساخت ابروژل کمتر می‌شود،

درصد وزنی نووالاک استفاده می‌شود. چگالی لایه پارامتری است که نشان دهنده تراکم و میزان فاصله لایه‌های بازتاب دهنده از یکدیگر است. با افزایش چگالی لایه، تعداد لایه‌های آلومینیوم در واحد ضخامت افزایش می‌یابد، و فاصله آن‌ها از هم کم می‌شود، که این امر باعث می‌شود از یک سو انتقال حرارت تشعشعی کمتر شود و بازتاب قابل توجهی در بخش انتقال حرارت تشعشعی رخ دهد، و از سوی دیگر، حضور بیشتر آلومینیوم هدایت حرارتی عایق را افزایش دهد. این تاثیر متقابل چگالی لایه، باعث می‌شود که در یک چگالی لایه مشخص، میزان کمینه شار حرارت عبور کند. برای پیش بینی، شار حرارتی عبوری از عایق چندلایه، و هم‌چنین پیش‌بینی چگالی لایه بهینه، روابط تجربی ارائه شده است [۱۲]، اما ثوابت تجربی این رابطه صرفاً برای چند نوع خاص و محدود از جداکننده‌ها انتخاب شده است و برای تمام عایق‌ها کاربردی نیست. هم‌چنین، تلاش‌هایی به روش‌های عددی صورت گرفته [۱۳] و [۱۴] که چندان ادامه پیدا نکرده است. در بخش پیش‌رو، با انجام آزمون کارایی حرارتی، محدوده چگالی لایه با کمینه شار حرارتی مورد بررسی قرار می‌گیرد.

این بار دمای صفحه داغ روی ۲۰۰°C تنظیم شده است. نمونه عایق چند لایه با چگالی لایه متفاوت و البته ضخامت یکسان ۱ cm روی صفحه داغ قرار گرفته و سطح دیگر در معرض هوای آزاد ۲۵°C قرار می‌گیرد. دور نمونه با نمد عایق حرارتی پوشانده می‌شود تا



شکل ۱۲ نمودار دما-زمان عایق چندلایه با چگالی لایه مختلف و با جداکننده ایروژل در بازه دمایی  $25^{\circ}\text{C}$  تا  $200^{\circ}\text{C}$  (ضخامت نمونه‌ها یکسان و معادل ۱ سانتیمتر است)



شکل ۱۳ نمودار تغییرات هدایت حرارتی ویژه با تغییر چگالی لایه نمونه‌های عایق چند لایه

در صورتی که گاز درون حفرات هوا باشد، و یا شرایط خلا باشد، چگالی کمتر بهینه‌تر است. همچنین در بخش دیگر این پژوهش نشان داده شد، کمترین حد انتقال حرارت هدایتی موثر کل عایق چند لایه برای شرایط مرزی دمایی  $25^{\circ}\text{C}$  تا  $200^{\circ}\text{C}$  در چگالی لایه ۲۵ layer/cm رخ می‌دهد. تفسیر این متغیر این است که برای ساخت عایق چند لایه چه در حالتی که ضخامت کم باشد، چه در حالتی که ضخامت زیاد باشد، برای این شرایط مرزی خاص،

به دنبال آن چگالی ایروژل کمتر شده و حجم حفرات بزرگتر می‌شود و در نتیجه کسر فاز جامد ایروژل کمتر می‌شود. اگرچه با کم شدن چگالی، هوا کسر بیشتری از ایروژل را تشکیل می‌دهد و انتقال حرارت هدایتی فاز گاز بیشتر می‌شود، اما روند نزولی در هدایت حرارتی موثر ایروژل نووالاک، این حقیقت را روشن می‌کند که در این بازه دمایی، و در محدوده چگالی قابل دستیابی، انتقال حرارت هدایتی فاز جامد غالب است. به طور کلی این نتیجه قابل استنباط است که در دماهای بالا و

تاثیر متقابل ضخامت و تعداد لایه را بر شار تشعشعی و هدایتی عبوری از ایروژل و آلومینیوم را فراهم می‌کند و تعداد آزمون‌های لازم را به حداقل کاهش می‌دهد.

### تشکر و قدردانی

از صندوق حمایت از پژوهشگران و فناوران کشور (Iran National Science Foundation: INSF) برای حمایت از انجام این پژوهش قدردانی می‌شود.

بهترین حالت این است که فاصله هر لایه آلومینیوم ۰/۰۴ cm باشد (۲۵ لایه در هر سانتی متر). کنترل فاصله لایه‌ها، کمترین ضریب هدایتی حرارتی موثر را تضمین می‌کند، و با حفظ این فاصله و بالا بردن ضخامت، میزان شار عبوری کاهش می‌یابد. همان طور که قبلاً ذکر شد، بررسی مستقل اثر ضخامت و تعداد لایه بر عملکرد عایق، نیاز به آزمون‌های بسیار زیادی دارد که عملاً امکان پذیر نبوده و به طور کلی مسیر درستی برای پژوهش نیست. متغییر چگالی لایه، امکان بررسی

## مراجع

- 1- Hedayat A., Hastings A. and Brown T., Analytical Modeling of Variable Density Multilayer Insulation for Cryogenic Storage., NASA/TM-2004-213175.
- 2-Spinnler M., Winter E.F. and Viskanta R., Studies on High-Temperature Multilayer Thermal Insulations, International Journal of Heat and Mass Transfer, 47, 1305-1312, 2004.
- 3- Bi C., Tang G.H., Hu Z.J., Yang H.L. and Li J.N., Coupling Model for Heat Transfer Between Solid and Gas Phases in Aerogel and Experimental Investigation, International Journal of Heat and Mass Transfer, 79, 126-136, 2014.
- 4-Naseri I., Kazemi A., Bahramian AR. and Kashani M.R., Preparation of organic and carbon xerogels using high-temperature-pressure sol-gel polymerization, Materials & Design 61, 35-40, 2014.
- 5-Pirard R., Blacher S., Brouers F. and Pirard J. P., Interpretation of Mercury Porosimetry Applied to Aerogels, Journal of Material Research, 10, 2114-2119, 1995.
- 6- Ruben G. C. and Pekala R. W., High-Resolution Transmission Electron Microscopy of the Nanostructure of Melamine-Formaldehyde Aerogels, Journal of Non-Crystal Solids, 186, 219-231, 1995.
- 7-Pirard R. and Pirard J.-P., Mercury Porosimetry Applied to Precipitated Silica, Stud. Surface Science Cataly, 128, 603-611, 2000.
- 8-Alié C., Pirard R., and Pirard J.-P., Mercury Porosimetry: Applicability of the Buckling-Intrusion Mechanism to Low-Density Xerogels, Journal of Non-Crystal Solids, 292, 138-149, 2001.
- 9-Pirard R., Sahouli B., Blacher S., and Pirard J.-P., Sequentially Compressive and Intrusive Mechanisms in Mercury Porosimetry of Carbon Blacks, Journal of Colloid Interface Sci, 217, 216-217, 1999.
- 10-Pirard R., Rigacci A., Marechal J. C., Quenard D., Chevalier B., Achard P., and Pirard J.-P., Characterization of Hyperporous Polyurethane-Based Gels by Non-Intrusive Mercury Porosimetry, Polymer 44, 4881-4887, 2003.
- 11-Bahramian A.R. and Kokabi M., Ablation Mechanism of Polymer Layered Silicate Nanocomposite Heat Shield, Journal of Hazardous Materials 166, 445-454, 2009.
- 12- Johnson W.L., Optimization of Layer Densities for Spacecraft Multilayered Insulation Systems, Cryogenics Test Laboratory, Kennedy Space Center, 4865-4867, 2009.
- 13- Can H. and Yue Z., Calculation of High-temperature Insulation Parameters and Heat Transfer Behaviors of Multilayer Insulation by Inverse Problems Method, Chinese Journal of Aeronautics, 27, 791-796, 2014.
- 14-Ji T., Zhang R., Sunden B. and Xie G., Investigation on thermal Performance of High Temperature Multilayer Insulations for Hypersonic Vehicles under Aerodynamic Heating Condition, Applied Thermal Engineering 70, 957-965, 2014.