Công thức xấp xỉ xác định hệ số dẫn nhiệt của vật liệu composite với cốt là vi cầu thủy tinh rỗng, nền epoxy

TS. NGUYỄN THỊ HƯƠNG GIANG
Trường Đại học Giao thông vận tải

TÓM TẮT: Bài báo nghiên cứu hệ số dẫn nhiệt của vật liệu composite có cốt liệu là vi cầu thủy tinh rỗng đặt trong nền epoxy, khi tỉ lệ thể tích pha cốt biến đổi từ 0 tới 60%, độ dày thành thủy tinh và bán kính ngoài thay đổi. Dựa trên ý tưởng về bổ sung cốt giả tưởng có tính chất giống pha nền và phương pháp xấp xỉ tự tương hợp tổng quát, tác giả xây dựng công thức xấp xỉ đánh giá hệ số dẫn nhiệt của loại vật liệu này. Kết quả đạt được sẽ so sánh với kết quả thực nghiệm để kiểm tra độ tin cậy.

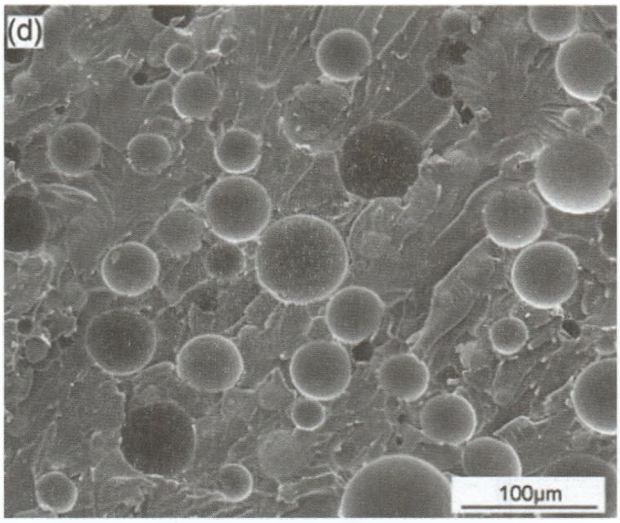
TỪ KHÓA: Hệ số dẫn nhiệt, vi cầu thủy tinh, vật liệu bọt thủy tinh.

ABSTRACT: The article studies the thermal conductivity of hollow glass microsphere filled epoxy-matrix composites, when the volume ratio hollow glass microsphere from 0 to 60%, the wall thickness of glass and the outer radius changes. Based on the idea of fictitious spherical inclusions which have the physical property of matrix epoxy and the generalized self-consistant approximation, the author builds an approximation formula to evaluate the thermal conductivity coefficient of this material. The obtained results will be compared with experimental results to check reliability.

KEYWORDS: Thermal conductivity, hollow glass microsphere, syntactic foam.

1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Vi cầu thủy tinh rỗng (hollow glass microsphere - HGM) bao gồm khí trơ bên trong và thủy tinh cứng bên ngoài. Vật liệu composite gồm cốt liệu là vi cầu thủy tinh rỗng, nền epoxy gọi là vật liệu bọt thủy tinh (syntactic foam). Đó là một vật liệu cấu trúc tuyệt vời với các đặc tính vật lý đẳng hướng, cường độ nén và độ cứng cao, hấp thụ độ ẩm thấp và ổn định nhiệt độ cao. Vật liệu này được phát triển vào đầu những năm 1960 như một vật liệu nổi cải tiến cho các ứng dụng hàng hải. Ngoài ra, nó còn được dùng làm phương tiện vận tải đường không và mặt đất. Ngày nay, với sự phát triển của công nghệ sản xuất, loại vật liệu này đang được quan tâm nghiên cứu rộng rãi [1-3].



Hình 1.1: Bọt thủy tinh (Syntactic foam)

Các tính chất cơ học của bọt thủy tinh đã được nghiên cứu rộng rãi thông qua các thí nghiệm, hầu hết tập trung vào sự biến đổi của cường độ nén đối với tỷ lệ giữa thể tích của HGM và độ dày thành tương đối của HGM [4-8]. Tuy nhiên, các nghiên cứu về độ dẫn nhiệt còn hạn chế. Liang và Li [9] đã đo độ dẫn nhiệt của polypropylene chứa đầy HGM. Bailin Zhu và cộng sự [10] đã đo độ dẫn nhiệt và điện của bọt thủy tinh với 4 loại hạt khác nhau của HGM. Yingjie Qiao và cộng sự [11] đo độ dẫn nhiệt của bọt epoxy-cú pháp với HGM loại S38HS.

Việc áp dụng các công thức xấp xỉ trung bình có sẵn của vật liệu composite để tính toán độ dẫn nhiệt hiệu dụng của bọt thủy tinh đạt kết quả không tốt. Sai số với kết quả thí nghiệm là đáng kể khi phần thể tích HGM lớn. Bởi vì hầu hết các phép gần đúng trung bình phổ biến dựa trên bài toán phân bố thưa của cốt liệu elip trong pha nền vô tận, nên đối với vật liệu tổng hợp có đặc tính thành phần tương phản cao như bọt thủy tinh, các giá trị gần đúng khác biệt đáng kể so với thực nghiệm. Để khắc phục điều đó, trong bài báo này, ở phần 3, dựa trên ý tưởng xem xét vật liệu có các cốt liệu phân bố chặt với tỉ lệ thể tích lớn của Tran [12], bổ sung thêm cốt giả tưởng với tính chất giống pha nền và xấp xỉ tự tương hợp tổng quát, tác giả xây dựng một công thức xấp xỉ có thể dự đoán độ dẫn nhiệt hiệu dụng của bọt thủy tinh và sát với kết quả thực nghiệm.

2. CÁC CÔNG THỨC XẤP XỈ TRUNG BÌNH XÁC ĐỊNH HỆ SỐ DẪN NHIỆT VẬT LIỆU COMPOSITE

Hầu hết các công thức xấp xỉ xác định hệ số dẫn hiệu dụng của vật liệu composite dựa trên bài toán phân bố thưa của cốt liệu elip trong pha nền vô tận của Eshelby [13], ví dụ xấp xỉ vi phân, xấp xỉ Mori-Tanaka, xấp xỉ tự tương hợp. Hệ số dẫn hiệu dụng của dung dịch loãng được biểu diễn:

$$C^{eff} = C_m + \sum_{i=1}^{n} \phi_i (C_i - C_m) D_i (C_i, C_m) \quad (1)$$

Trong đó: C_i, ϕ_i - Hệ số dẫn nhiệt và tỉ lệ thể tích của pha cốt thứ "*i*" ($i = 1..n$); C_m, ϕ_m - Hệ số dẫn nhiệt và tỉ lệ thể tích của pha nền; $D(C_i, \phi_m)$ - Phương trình hàm dạng của pha cốt "*i*".

Nội dung chính của sơ đồ vi phân là cho một tỷ lệ nhỏ pha cốt ϕ_iVt (Vt = 1, i = 1,...,n) vào pha nền rồi tính mô-đun vĩ mô của hỗn hợp. Bước sau sử dụng hỗn hợp đó làm pha nền và thêm vào tỷ lệ nhỏ pha cốt rồi tính mô-đun vĩ mô của hỗn hợp thứ 2... và tiếp tục cho tới bước thứ N khi ta nhận được tỷ lệ thể tích phải có của pha cốt. Xấp xỉ vi phân với hệ số dẫn hiệu dụng $C^{eff} = C$ của vật liệu (n+1) thành phần được thể hiện qua phương trình vi phân:

$$\frac{dC}{d\phi t} = \frac{1}{1-\phi t} \sum_{i=1}^{n} \phi_i (C_i - C) D(C_i, C) \quad (2)$$

Với: $C(0) = C_m, \quad 0 \le t \le 1$ (3)

Trong trường hợp vật liệu được lấp đầy bởi các cốt liệu, thiếu pha nền ($\phi_m = 0$, $\phi t \to 1$ và $\sum \phi_i (C_i - C) D(C_i, C) \to 0$), xấp xỉ tự tương hợp (SC) với hệ số dẫn hiệu dụng $C^{eff} = C$ là nghiệm của phương trình:

$$\sum_{i=1}^{n} \phi_i (C_i - C) D(C_i, C) = 0 \quad (4)$$

Hệ số dẫn nhận được từ phương trình (4) thỏa mãn đường bao của Hashin-Shtrikman (HSB). Đó là giới hạn toán học tốt nhất dựa trên các thuộc tính thành phần và tỉ lệ thể tích của vật liệu tổng hợp d-chiều.

$$HSL = P(C_{\min}) \le C^{eff} \le P(C_{\max}) = HSU \quad (5)$$

với:

$$C_{\min} = \min\{C_m, C_1, C_2\}\ ; C_{\max} = \max\{C_m, C_1, C_2\} \quad (6)$$

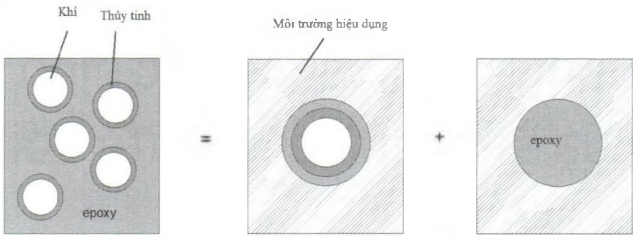
và:

$$P(C) = \left(\frac{\phi_m}{C_m + C_*} + \sum_{i=1}^{n} \frac{\phi_i}{C_i + C_*} \right)^{-1} - C_*, \qquad C_* = (d-1)C \quad (7)$$

3. XẤP XỈ TỰ TƯƠNG HỢP TỔNG QUÁT VỚI HIỆN TƯỢNG LẤP ĐẦY CỐT CỦA BỌT THỦY TINH

Ý tưởng chính của tự tương hợp tổng quát (GSC) là từ nghiên của Christensen [14] với vật liệu 2 pha sử dụng mô hình 3 pha, trong đó cốt liệu hình cầu (tròn) được bao phủ bởi lớp vỏ bọc hình cầu (tròn) của pha nền và đặt trong môi trường hiệu dụng vô tận. Trong trường hợp này, kết quả theo GSC trùng với xấp xỉ của Maxwell và Mori-Tanaka và với 1 trong 2 đường bao của Hashin-Strikman.

Để tính toán với hiện tượng lấp đầy cốt liệu của bọt thủy tinh, tác giả sửa đổi sơ đồ tự tương hợp tổng quát bằng cách kết hợp giả định về cốt liệu hư cấu. Cốt liệu hư cấu này có tính chất vật lý giống pha nền. Theo ý tưởng này, tác giả xác định vật liệu bọt thủy tinh gồm 2 cốt liệu đặt trong môi trường hiệu dụng vô tận. Kết quả cuối cùng sẽ được tính toán dựa trên 2 sơ đồ này *(Hình 3.1)*.



Hình 3.1: Tự tương hợp tổng quát với hiện tượng lấp đầy cốt

Vấn đề đầu tiên xem xét tương ứng với dung dịch có cốt liệu hình cầu giả tưởng có tính chất giống pha nền C_m) và tỉ lệ thể tích v_0 trong môi trường hiệu dụng *C (Hình 3.1b)*. Tiệm cận chính xác lời giải của hệ số dẫn hiệu dụng với phân bố thưa ($v_0 \le 1$):

$$C^1 = C + v_0 \frac{3C(C_m - C)}{C_m + 2C} \quad (8)$$

Hàm dạng ở *Hình 3.1b* có dạng:

$$D_1 = \frac{3C}{C_m + 2C} \quad (9)$$

Ở *Hình 3.1a*, vật liệu 4 pha gồm cốt liệu phủ nằm trong môi trường hiệu dụng C. Cốt phủ dạng quả cầu lồng nhau 3 pha gồm khí trơ hệ số dẫn C_2, tỉ lệ thể tích ϕ_2; vỏ thủy tinh hệ số dẫn C_1, tỉ lệ thể tích ϕ_1 được bọc bởi lớp vỏ nền hệ số dẫn C_m. Tỉ lệ thể tích của cốt được bọc là v_1, $v_1 + v_0 = 1$. Cốt được bọc ta đồng nhất thành một cốt tương đương hệ số dẫn C_{EI}. Trong trường hợp phân bố thưa ($v_1 << 1$), hệ số dẫn hiệu dụng của hỗn hợp là:

$$C^2 = C + v_1 \frac{3C(C_{EI} - C)}{C_{EI} + 2C} \quad (10)$$

Để tính C_{EI}, tác giả sử dụng công thức xấp xỉ phân cực đơn giản với hệ số dẫn hiệu dụng của vật liệu đẳng hướng vật liệu tổng hợp, đã được suy ra từ giới hạn tương tác ba điểm sử dụng các trường phân cực Hashin-Shtrikman và giả định tương tác gần của Pham và cộng sự [15].

$$C_{EI} = \left(\frac{v_m'}{3C_m} + \frac{v_1'}{C_1 + 2C_m} + \frac{v_2'}{C_2 + 2C_m} \right)^{-1} - 2C_m \quad (11)$$

$$v_1' = \frac{\phi_1}{v_1};\ v_2' = \frac{\phi_2}{v_1};\ v_m' = 1 - v_1' - v_2'$$

Sự tương tự giữa công thức (8) và (10) cho ta gợi ý có thể thay thế cốt giả tưởng bởi cốt tương đương có hệ số dẫn C_{EI}, tỉ lệ thể tích v_1. Hàm hình dạng D_2 giống hàm dạng D_1, C_{EI} thế chỗ cho C_m.

$$D_2 = \frac{3C}{C_{EI} + 2C} \quad (12)$$

Khi vật liệu được lấp đầy bởi cốt liệu là vi cầu thủy tinh rỗng, tỉ lệ thể tích của vi cầu thủy tinh rỗng ϕ ($\phi = \phi_1 + \phi_2$) đạt giá trị max là ϕ^M và tỉ lệ thể tích của lớp vỏ nền tiến về 0, tương ứng khi đó tỉ lệ thể tích của cốt giả tưởng v_0 và cốt phủ dạng 3 quả cầu lồng nhau v_1 nhận giá trị tương ứng là 1 - ϕ^M và ϕ^M. Hơn nữa, tác giả đề xuất một phép gần đúng hình học đơn giản, trong đó v_0, v_1 được cố định ở các giá trị này trên một phạm vi rộng của phần thể tích cốt liệu. Đưa D_1, D_2 từ (8) và (10) vào phương trình tự tương hợp (4) với $v_0 = 1 - \phi_m$ và $v_1 = \phi_m$, ta có công thức xấp xỉ tự tương hợp tổng quát có tính đến hiệu ứng lấp đầy vi cầu thủy tinh rỗng đối với độ dẫn nhiệt hiệu dụng của bọt thủy tinh:

$$\left(1-\phi^M\right)\frac{C_m-C}{C_m+2C}+\phi^M\frac{C_{EI}-C}{C_{EI}+2C}=0 \quad (13)$$

4. ÁP DỤNG

Để kiểm tra độ tin cậy của công thức (13), tác giả sử dụng những thông tin về các dạng hạt vi cầu thủy tinh rỗng trong bài báo [10]. 4 dạng hạt với các kí hiệu là K1, K20, S38HS và S60HS sản xuất tại công ty 3M China.

Hệ số dẫn nhiệt của epoxy, thủy tinh và khí trơ có thể đo, lần lượt là $C_m = 0,2$, $C_1 = 0,75$, $C_2 = 0,029$ (W/(mK)) nhưng hệ số dẫn của vi cầu thủy tinh C_{12} rất khó để đo trực tiếp. Có thể đánh giá hệ số dẫn nhiệt của vi cầu thủy tinh bằng xấp xỉ Maxwell, kết quả thể hiện trên *Bảng 4.1*.

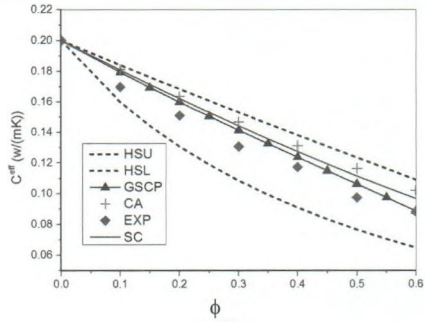
$$C_{12}=\left(\frac{\phi_1'}{3C_1}+\frac{\phi_2'}{C_2+2C_1}\right)^{-1}-2C_1 \quad (14)$$

$$\phi_1'=\frac{\phi_1}{\phi_1+\phi_2};\phi_2'=\frac{\phi_2}{\phi_1+\phi_2} \quad (15)$$

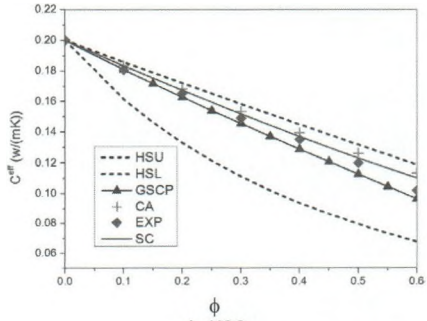
Bảng 4.1. Tính chất vật lý của vi cầu thủy tinh

	Mật độ (g/cm³)	Bán kính ngoài (µm)	Độ dày vỏ (µm)	Hệ số dẫn nhiệt (W/(mK)
K1	0,125	32,5	0,54	0,053
K20	0,200	32,5	0,88	0,069
S38HS	0,380	20	1,05	0,106
S60HS	0,600	15	1,29	0,154

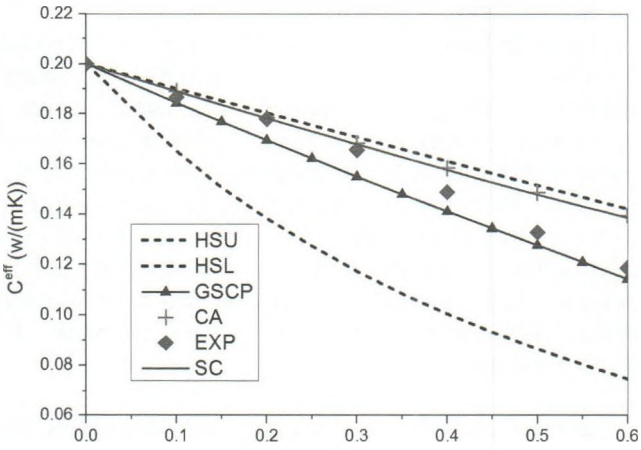
Sự sắp xếp cốt liệu ngẫu nhiên lấp đầy vật liệu được tính toán trong tài liệu [16] với $\phi^M = 0,64$ trong không gian 3 chiều. Kết quả được thể hiện các đồ thị trên *Hình 4.1*, trong đó GSCP là kết quả được xây dựng ở mục 3, công thức (13) so sánh với đường bao Hashin-Strikman (HSU - đường bao trên, HSL - đường bao dưới), kết quả thực nghiệm (EXP) của Bailin Zhu và cộng sự [10], xấp xỉ tự tương hợp (SC), xấp xỉ tương tác 3 điểm (CA). Tỉ lệ thể tích vi cầu thủy tinh biến đổi từ 0 tới 60%.



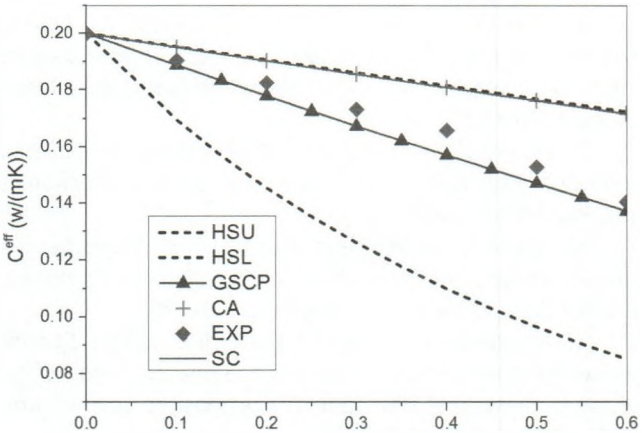
a. K1



b. K20



c. S38HS



d. S60HS

Hình 4.1: Hệ số dẫn hiệu dụng của bọt thủy tinh

Xấp xỉ tương tác 3 điểm tính cho vật liệu 2 pha: nền - epoxy, cốt - vi cầu thủy tinh.

$$C_{CA}=\left(\frac{\phi_m}{C_m+2C_0}+\frac{\phi}{C_{12}+2C_0}\right)^{-1}-2C_0 \quad (16)$$

Trong đó: C_0 - Nghiệm của phương trình:

$$C_0=\left(\frac{\xi_1}{C_m+2C_0}+\frac{\xi_2}{C_{12}+2C_0}\right)^{-1}-2C_0 \quad (17)$$

Các tham số tương quan 3 điểm ξ_1, ξ_2 được xác định theo phương pháp phần tử hữu hạn và được tính toán trong tài liệu [13].

Quan sát các đồ thị trên *Hình 4.1* ta thấy các kết quả đều nằm trong giới hạn của đường bao Hashin-Strikman. Kết quả theo xấp xỉ CA, SC khi so sánh với thực nghiệm EXP chênh lệch nhiều, với K1 (6 - 19%), còn S38HS và S60HS thì khi tỉ lệ thể tích vi cầu nhỏ khá sát nhưng khi tỉ lệ thể tích cốt lớn hơn 30% thì sai số dao động 6 - 18%. Nhưng với kết quả theo GSCP, khi so sánh với EXP thì sai số giảm đáng kể, với vi cầu thủy tinh S38HS, S60HS khi tỉ lệ thể tích vi cầu lớn hơn 30%, sai số giảm còn dưới 5%; với K20 khi tỉ lệ thể tích vi cầu lớn hơn 50%, sai số giảm về gần 5%; còn K1 sai số giảm về dao động từ 6 - 9%.

5. KẾT LUẬN

Dựa trên sơ đồ tự tương hợp tổng quát và một số giả thuyết như cốt liệu ma trận hư cấu, xấp xỉ hình học và xấp xỉ cốt tương đương, một phương trình tự tương hợp tổng quát đơn giản đã được xây dựng cho hệ số dẫn nhiệt hiệu dụng của bọt thủy tinh. Việc so sánh với các công thức xấp xỉ khác và thí nghiệm chứng tỏ độ tin cậy của công thức đã xây dựng. Phép gần đúng này có vẻ đủ tổng quát, đơn giản, linh hoạt và được kỳ vọng sẽ hữu ích cho các ứng dụng kỹ thuật rộng rãi, cho phép các nhà thiết kế chọn đúng cấu trúc vi mô của vật liệu để đạt được hệ số dẫn nhiệt mong muốn.

Lời cảm ơn: Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường Đại học GTVT trong Đề tài mã số T2022-CB-004.

Tài liệu tham khảo

[1]. Lin TC, Gupta N and Talalayev A. (2009), *Thermoanalytical characterization of epoxy matrix-glass microballoons syntactic foams*, Journal of Materials Science 44, pp.1520-1527.

[2]. Huang JS and Gibson LJ. (1993), *Elastic moduli of a composite of hollow sheres in a matrix*, Journal Mechanics and Physics of Solids 41, pp.55-75.

[3]. Gupta N and Woldesenbet E. (2003), *Hygrothermal studies on synstatic foams and compressive determination*, Journal Composite Structures 61, pp.311-320.

[4]. Wouterson EM, Boey FY, Hu X, et al. (2005), *Specific properties and fracture toughness of syntactic foam: Effect of foam microstructures*, Journal Composites Science and Technology 65, pp.1840-1850.

[5]. Gupta N, Woldesenbet E and Mensah P. (2004), *Compression properties of syntactic foams: Effect of cenosphere radius ratio and specimen aspect ratio*, Composite Part A: Applied Science and Manufacturing 35, pp.103-111.

[6]. Bunn P and Mottram J. T. (1993), *Manufacture and compression properties of syntactic foams*, Composites 24(7), pp.565-571.

[7]. Bardella L and Genna F. (2001), *On the elastic behaviour of syntactic foams*, Int. J. Solids Struct 38, pp.7235-7260.

[8]. Karthikeyan CS, Sankaran S and Kishore (2004), *Elastic behaviour of plain and fibre-reinforced syntactic foams under compression*, Materials Letters 58, pp.995-999.

[9]. Liang JZ and Li FH. (2007), *Simulation of heat transfer in hollow-glass-bead-filled polypropylene composites by finite element method*, Polymer Testing 26, pp.419-424.

[10]. Bailin Zhu et al. (2012), *Thermal, dielectric and compressive properties of hollow glass microshere filled epoxy-matrix composites*, Journal of Reinforced Plastic and Composites 31(19), pp.1311-1326.

[11]. Yingjie Qiao et al. (2015), *Thermal conductivity and compressive properties of hollow glass microsphere filled epoxy-matrix composites*, Journal of Reinforced Plastic and Composites 0(0), pp.1-9.

[12]. Bao Viet Tran (2019), *A simple model to predict effective conductivity of multicomponent matrix-based composite materials with high volume concentration of particles*, Composites part B 173, 106999.

[13]. J. D. Eshelby (1957), *The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusio, and related problems*, Proc. R. Soc. Lond., A41, pp.376-396.

[14]. Christensen R, Lo K. (1979), *Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models*, J Mech Phys Solids 27(4), pp.315-330.

[15]. Pham D, Tran A, Do Q. (2003), *On the effective medium aproximations for the properties of isotropic multicomponent matrix-based composites*, Internat J Engrg Sci 68, pp.75-85.

[16]. Berryman JG. (1983), *Random close packing of hard spheres and disks*, Phys Rev A 27(2), p.1053.

Ngày nhận bài: 21/4/2022
Ngày chấp nhận đăng: 17/5/2022
Người phản biện: TS. Nguyễn Đình Hòa
TS. Nguyễn Thị Quỳnh Trang