



交叉层积法对聚乙烯热导率的提高

余晓翔# 邓程程# 马瑞民 黄晓明* 杨诺*

Nano Heat Group, <http://nanoheat.energy.hust.edu.cn/index.html>



华中科技大学
Huazhong University of Science and Technology

华中科技大学能源与动力工程学院, 武汉, 430074

文章编号: 163067

摘要

最近研究发现, 一维聚乙烯单链和纳米纤维具有很高的热导率, 这使得其有望替代常规的金属成为良好的散热材料。此外, 实验和模拟研究也得到了热学性质良好的聚乙烯体块材料。但是, 其良好热学性质都只是沿单个方向, 这限制了聚乙烯的应用。本文提出编织层积和平铺层积方法建立的两种结构, 可以实现聚乙烯材料的双向高热导率。我们通过平衡分子动力学模拟计算得到编织层积和平铺层积聚乙烯体块材料的热导率。结果表明, 这两种材料都具有沿两个方向上的良好导热性质, 而且室温下, 平铺层积结构的热导率高达181 W/m-K, 比无定形聚乙烯体块材料高三个数量级, 编织平铺结构也比无定形聚乙烯体块材料高两个数量级, 为16 W/m-K。通过分析发现, 链间范德华力使得结构中原子的振动更接近晶体, 但是链的弯折引起的声子散射, 阻碍了声子的输运。本研究将为设计制造双向高热导率的聚合物提供指导。

模型与方法

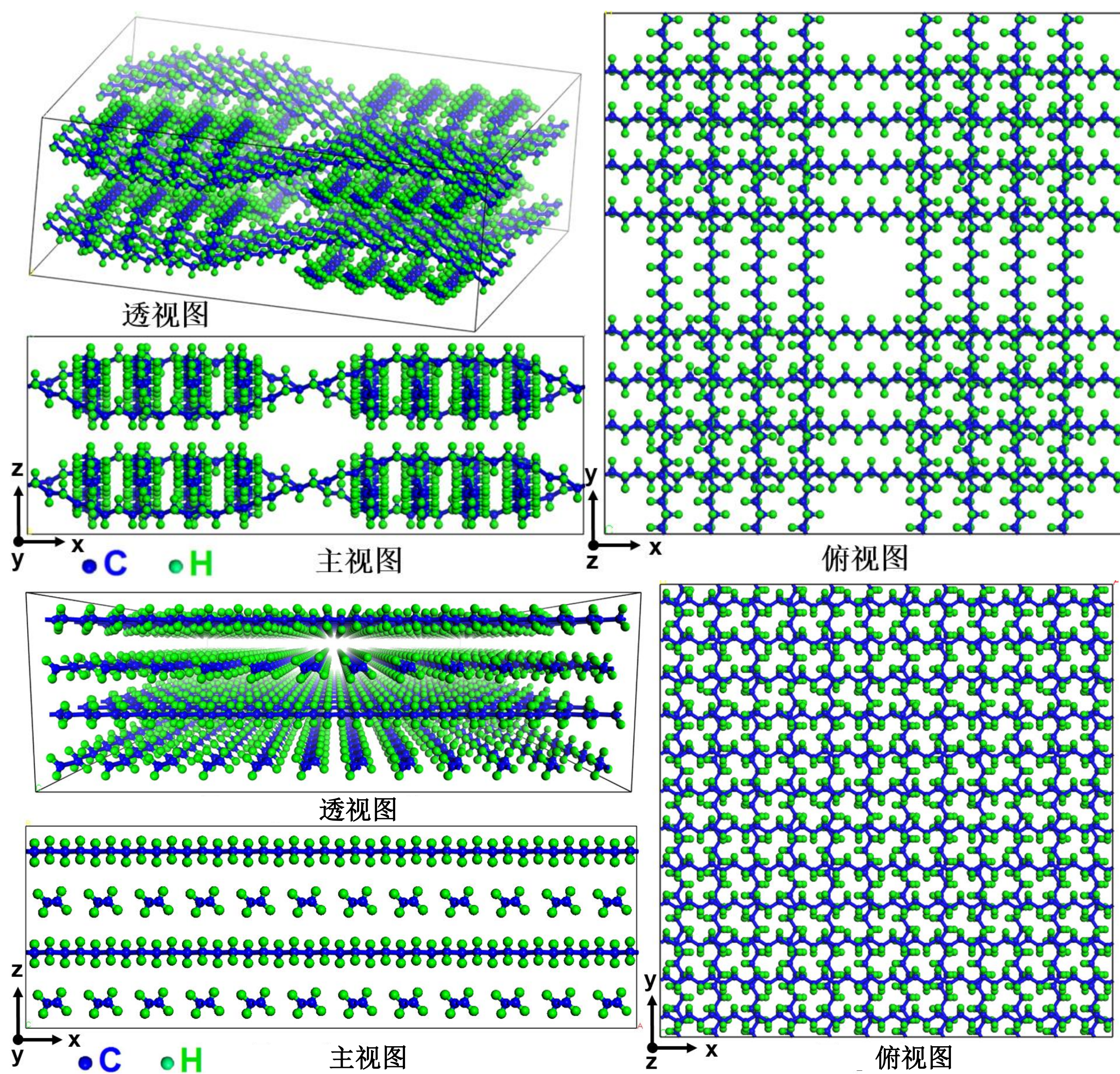


图1 编织层积 (CWPEL) 和平铺层积 (CPPEL) 聚乙烯的模拟单元结构图, 我们只关注平面内两个方向上 (x和y) 的热导率。

本文的模拟计算使用 LAMMPS 软件, 采用平衡分子动力学方法, 根据 Green-Kubo 公式计算热导率。其中, k_B 为玻尔兹曼常数, V 为系统体积, T 为温度, τ 为相关时间, τ_0 为热流自相关函数的积分上限, 角括号表示系综平均。

$$\kappa = \frac{V}{3k_B T^2} \int_0^{\tau_0} \langle \vec{J}(0) \cdot \vec{J}(\tau) \rangle d\tau$$

本模拟采用 AIREBO 势函数, 包括共价键相互作用 (REBO), 非键相互作用 (LJ) 和扭转相互作用 (Torsion)。

$$E = \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} \left[E_{ij}^{\text{REBO}} + E_{ij}^{\text{LJ}} + \sum_{k \neq i, j} \sum_{l \neq i, j, k} E_{kijl}^{\text{tors}} \right]$$



国家自然科学基金资助项目
NO. 51576076 NO. 51576077 NO. 51606072
Physical Review Letters **2008**, 101, (23), 235502.
Nature Nanotechnology **2010**, 5, (4), 251-5.
Polymer **2011**, 52, (8), 1711-1715.
Scientific Reports **2015**, 5, 16543.
arXiv preprint arXiv:1605.01540 **2016**.

模拟结果

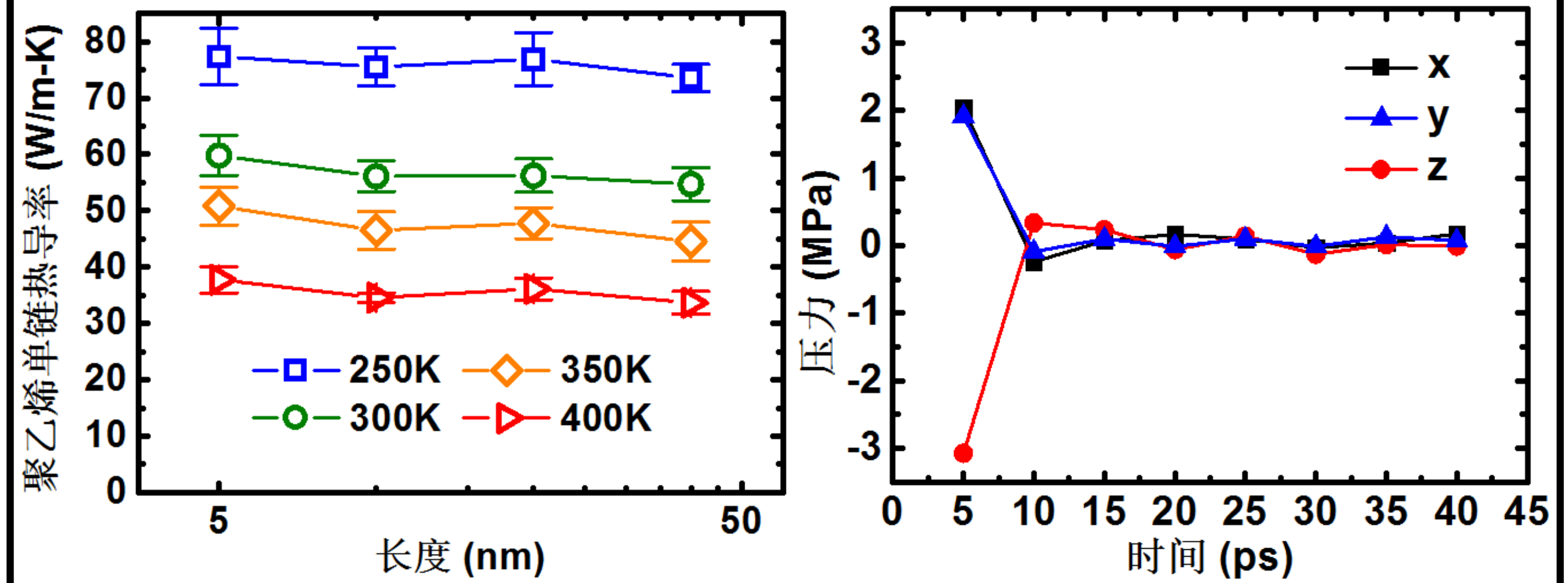


图2 (a) 不同温度下聚乙烯单链热导率随体系尺寸的变化; (b) CWPEL结构NPT系综下体系压力随运行时间的变化。

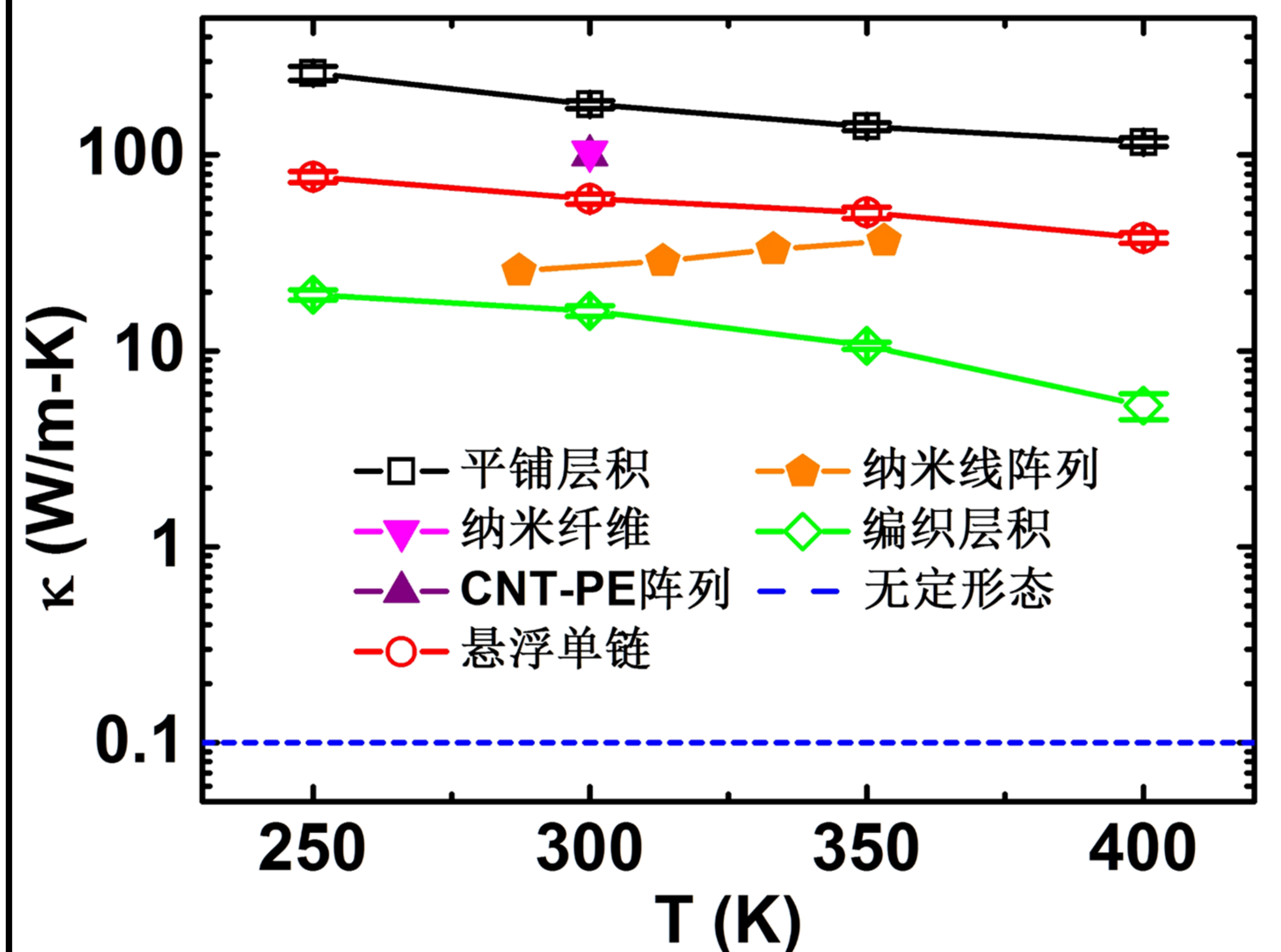


图3 编织层积和平铺层积聚乙烯热导率随温度的变化。

由上图可知, 两种结构都实现了沿两个方向的良好导热性质。而且CPPEL和CWPEL热导率比无定形聚乙烯分别要高三个和两个量级。此外, 上述热导率的数值是其有效热导率, 这是根据总体积计算得到的。所以, 当只考虑实际体积时, 室温下CWPEL中聚乙烯链的实际热导率为49.6 W/m-K, 略小于聚乙烯单链热导率 (~55 W/m-K)。对CPPEL而言, 其中聚乙烯链的实际热导率为362 W/m-K。

分析与总结

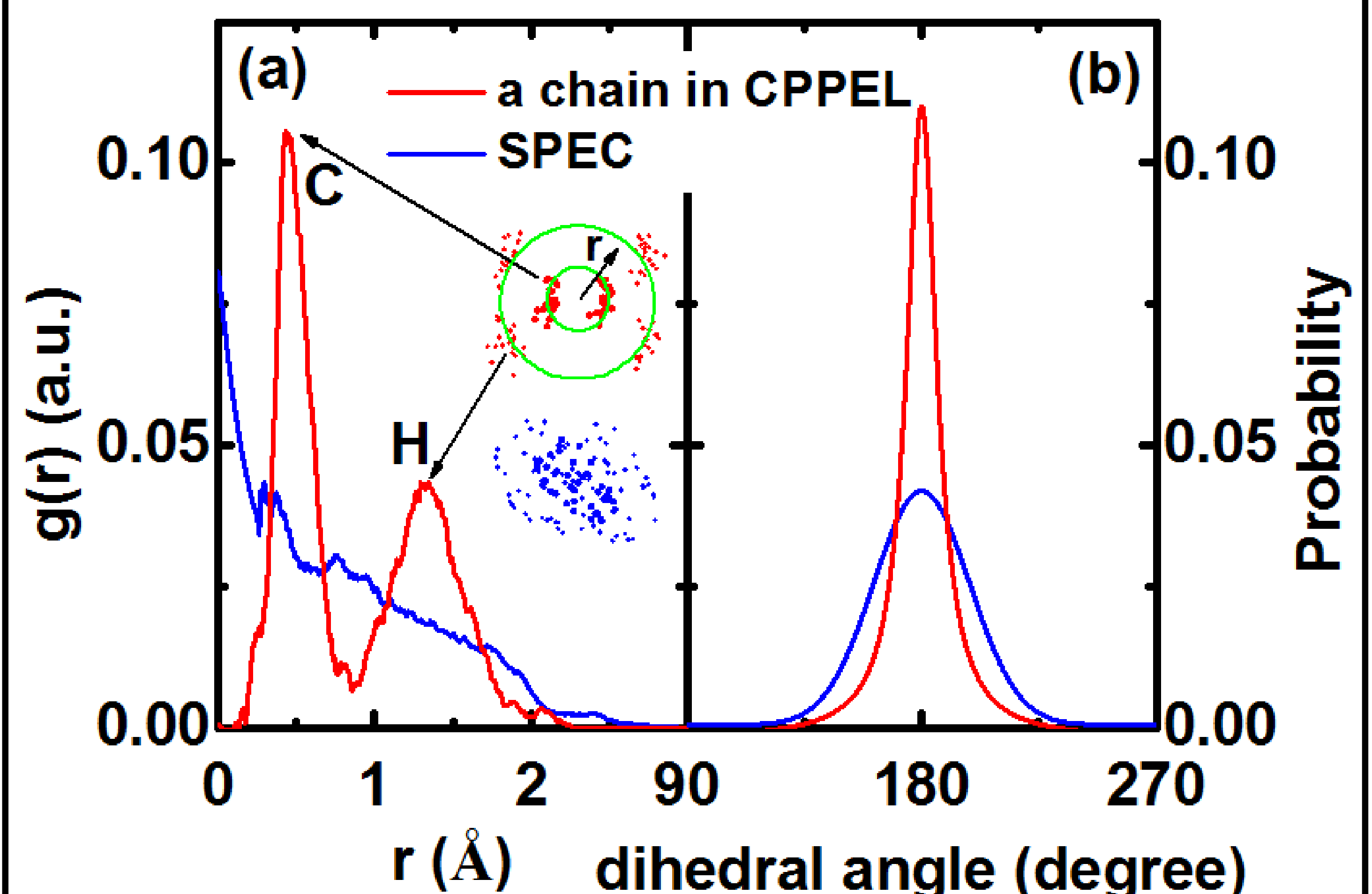


图4 CPPEL的径向分布函数和骨架二面角概率分布函数。

本文提出编织层积和平铺层积方法, 实现了聚乙烯体块材料的双向高热导率。本研究将为设计制造双向高热导率的聚合物提供指导。而且这一设计思路同样适用于其他的一维材料。