

SiO₂/聚四氟乙烯复合介质材料热性能和介电性能的数值模拟*

刘曰利¹⁾ 赵思杰¹⁾ 陈文²⁾ 周静^{2)†}

1) (武汉理工大学材料科学与工程学院, 硅酸盐建筑材料国家重点实验室, 武汉 430070)

2) (武汉理工大学材料科学与工程学院, 材料复合新技术国家重点实验室, 武汉 430070)

(2022 年 4 月 27 日收到; 2022 年 7 月 7 日收到修改稿)

SiO₂/聚四氟乙烯 (polytetrafluoroethylene, PTFE) 复合介质材料的热膨胀系数和介电常数主要受到 SiO₂ 填充量的影响, 如何准确预测其影响至今仍是一个很大的挑战. 本文通过数值模拟系统地研究 SiO₂/PTFE 复合介质材料的热膨胀系数和介电常数. 结果表明, 随着 SiO₂ 填充量的增加, SiO₂/PTFE 复合介质材料的热膨胀系数降低, 介电常数增加, 且与文献报道数据取得良好的一致性 (Han K K, Zhou J, Li Q Z, Shen J, Qi Y Y, Yao X P, Chen W 2020 *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **31** 9196). 研究发现, 实心 SiO₂ 球 (体积分数为 30%)/PTFE 复合介质材料的热膨胀系数最小, 为 $7.5 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$; 而空心 SiO₂ 球 (体积分数为 10%)/PTFE 的介电常数最小, 为 2.06. 由于底部的实心 SiO₂ 球充当支撑作用, 底部实心 SiO₂ 球较密集的实心 SiO₂/PTFE 复合介质材料具有更低的热膨胀系数. SiO₂ 填料的大长径比会降低 SiO₂/PTFE 复合介质材料的热膨胀系数. 成型工艺对实心 SiO₂/PTFE 复合介质材料的热膨胀系数几乎没有影响. 该工作为通过调控 SiO₂/PTFE 复合介质材料的微观结构来控制其热膨胀系数和介电常数提供清晰的思路.

关键词: 数值模拟, 热膨胀系数, 介电常数

PACS: 02.70.Dh, 44.10.+i, 77.22.-d

DOI: 10.7498/aps.71.20220839

1 引言

为了适应 5 G 时代的高频应用, 高频印制电路板 (printed circuit board, PCB) 基材需要实现低介电常数以减少信号传播延迟和低介电损耗尽量减少信号损耗. 为了避免在应用时温度过高引起形状改变和热失效, 高频 PCB 基材需要具有优异的热稳定性和低热膨胀系数. 因此, 低介电常数和低热膨胀系数 (coefficient of thermal expansion, CTE) 复合介质材料的开发受到广泛关注.

聚合物陶瓷复合材料在微波波段具有优异的介电性能, 被广泛用于制造微波基片^[1]. 聚四氟乙烯

(polytetrafluoroethylene, PTFE) 在很宽的频率范围内具有稳定的介电常数和优异的化学稳定性, 但 PTFE 的高热膨胀系数 (CTE 大约为 $1.09 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$) 使其在实际应用中无法满足电子设备及相关电子器件的有效散热要求^[2]. 降低 PTFE 热膨胀系数的方法之一是在 PTFE 基材中填充无机玻璃纤维和陶瓷颗粒等填料^[3]. 过去十年来, 通过填充合适的陶瓷填料来调整聚合物的热、机械和介电性能的趋势越来越明显^[4–17]. SiO₂ 因其合适的介电常数和较小的 CTE 而被广泛使用. Chen 等^[18] 使用 5 μm 和 25 μm 的 SiO₂ 作为填料制备 SiO₂/PTFE 复合介质材料, 当该材料中 25 μm 的 SiO₂ 填充量为 60% (质量分数) 时, 该复合材料具有最高的模量、最低

* 国家自然科学基金 (批准号: 12174298)、湖北省自然科学基金重点项目 (批准号: 2019CFA044)、海南省科技计划三亚崖州湾科技城联合项目 (批准号: 20201g0158) 和深圳市自然科学基金 (批准号: JCYJ20210324135002007) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhousj@whut.edu.cn

的 CTE 和较低的介电性能. Murali 等^[4] 比较微米和纳米 SiO₂ 对复合材料结构和性能的影响, 结果表明含有微米填料的复合材料具有较低的介电常数和介电损耗. 同时, 有研究报告表明填料尺寸越小, 复合材料的 CTE 越低^[19,20]. 为了获得更低的介电常数, 许多研究人员将空气引入复合材料中. Zhou 等^[21] 制备一系列聚酰亚胺 (PI)/空心 SiO₂ 球 (hollow silica spheres, HSS) 复合薄膜. 当薄膜中 HSS 填充量为 10% (质量分数) 时, PI/HSS 薄膜的介电常数为 2.09. Jiang 和 Yuan^[22] 研究了 SiO₂ 粒径分布对 SiO₂/PTFE 复合材料性能的影响, 当复合材料中 SiO₂ 填充量 (质量分数) 为 31% (2 μm) 和 31% (15 μm) 时性能最佳. Ndayishimiye 等^[23] 通过冷烧结制备 SiO₂/PTFE 复合材料. 结果表明, 该复合材料在低频下表现出高介电损耗. 综合以上研究可以发现, SiO₂/PTFE 复合介质材料的热性能和介电性能主要受到 SiO₂ 填料的尺寸、填充量、微观结构和分布等影响.

为了准确研究复合材料热性能的影响因素, 研究人员利用数值模拟的方法研究其热过程^[24–26]. Shi 等^[27] 利用数值模拟研究碳纳米管增强 Al 基纳米复合材料的 CTE. 研究发现, 复合材料的 CTE 随碳纳米管直径的增加呈非线性变化, 随碳纳米管体积分数的增加呈线性下降. Hassanzadeh-Aghdam 和 Ansari^[28] 用微机械方法研究纤维排列对单向纤维增强金属基复合材料 (metal matrix composites, MMC) 热膨胀行为的影响. 结果表明, 除体积分数外, 纤维的形状和排列对 MMC 的横向 CTE 也具有显著影响. Chawla 等^[29] 使用数值模拟研究 SiC 颗粒体积百分比对 Al/SiC 复合材料 CTE 的影响规律, 结果表明, 随着 SiC 体积分数的增加, Al/SiC 复合材料的 CTE 逐渐降低, Al/SiC 复合材料的 CTE 是各向异性. Gurram 等^[30] 提出球体随机堆积的方法, 并结合有限元法计算材料特性: 对于低体积分含量填充物, 数值模拟结果和分析解决方案非常吻合; 对于高体积分含量填充物, 数值模拟结果和分析模型之间存在一些差异, 这种差异归因于填充物颗粒在靠近时的多体相互作用效应. 复合介质材料中填料的不均匀分布对复合材料的 CTE 也有重要影响. 然而, 对影响因素的准确预测仍然是一个巨大的挑战.

本文通过使用 COMSOL Multiphysics 软件对 SiO₂/PTFE 复合介质材料的热性能和介电常数

的影响因素进行数值模拟, 如实心 SiO₂ 球 (solid silica spheres, SSS) 和 HSS 的填充量、SiO₂ 的显微结构、分布、成型参数等. 研究结果有望发展一个新的物理模型, 以准确地预测 SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数.

2 数值模型

2.1 几何模型的建立

本文利用 C 语言编程的方法对 SiO₂/PTFE 复合介质材料进行建模, 保证 SSS 或 HSS 在 PTFE 中随机不干涉分布, SSS 和 HSS 的粒径分别为 7 μm 和 1.5 μm^[31]. SSS/PTFE 复合介质材料的模型尺寸为 30 μm×30 μm×30 μm. 由于 HSS 的粒径小于 SSS 的粒径, 因此 HSS/PTFE 的模型尺寸为 10 μm×10 μm×10 μm. 在 SiO₂/PTFE 复合介质材料中, SiO₂ 的填充量 (体积分数) 分别为 10%, 15%, 20%, 25% 和 30%. SSS 和 HSS 填充量为 30% 的 SiO₂/PTFE 复合介质材料模型图如图 1 所示. 为简化计算, 假设 PTFE 和 SiO₂ 的物性参数是各向同性, SiO₂ 球有统一的粒径, SiO₂/PTFE 复合介质材料的表面平整光滑等.

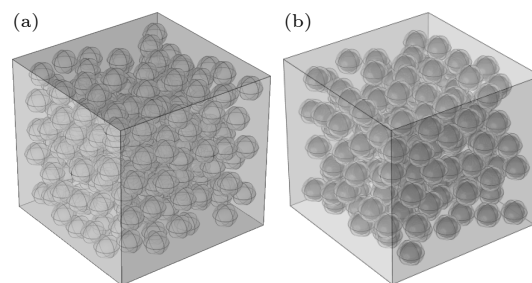


图 1 SiO₂/PTFE 复合介质材料的几何结构 (a) SSS; (b) HSS

Fig. 1. Geometric structure of the SiO₂/PTFE dielectric composite: (a) SSS; (b) HSS.

2.2 控制方程

热膨胀的计算方程为

$$\varepsilon_{th} = \alpha(T - T_{ref}), \quad (1)$$

其中, α 是材料的热膨胀系数, 也是温度的函数; ε_{th} 是热膨胀应变; T 是 SiO₂/PTFE 复合介质材料的温度; T_{ref} 是参考温度. 随着外界温度升高, 空气通过对流机制将热量传递给 SiO₂/PTFE 复合介质材料. SiO₂/PTFE 复合介质材料的温度随着外界温度的升高而升高. SiO₂/PTFE 复合介质材料的

温度升高对应于其热膨胀和热应力的产生. 根据傅里叶公式和能量守恒定律, 可得到固体热传导方程:

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} + \rho c u \cdot \nabla T + \nabla \cdot q = Q, \quad (2)$$

$$q = -k \nabla T, \quad (3)$$

其中, ρ 和 c 是材料的密度和比热容, u 是速度, q 是传热通量, Q 是热源, k 是导热系数 (热导率). SiO_2/PTFE 复合介质材料表面的传热过程遵循牛顿冷却定律:

$$q_0 = h \cdot (T_{\text{ext}} - T), \quad (4)$$

式中, q_0 是对流热通量, h 是对流换热系数, T_{ext} 是 SiO_2/PTFE 复合介质材料外界的温度.

线弹性材料的控制方程为 Duhamel-Hooks 方程:

$$\sigma = \mathbf{C} (\varepsilon - \varepsilon_0 - \varepsilon_{\text{th}}) + \sigma_0, \quad (5)$$

式中, σ 是应力, \mathbf{C} 是弹性矩阵, ε 是总应变, ε_0 是预应变, ε_{th} 是热应变, σ_0 是预应力. 总应变 ε 和弹性矩阵 \mathbf{C} 分别表示为

$$\varepsilon = \frac{1}{2} [(\nabla \mathbf{D})^T + \nabla \mathbf{D}], \quad (6)$$

$$\mathbf{C} = \mathbf{C}(E, \nu) = \frac{E}{(1+\nu)(1-2\nu)} \times$$

$$\begin{bmatrix} 1-\nu & \nu & \nu & 0 & 0 & 0 \\ \nu & 1-\nu & \nu & 0 & 0 & 0 \\ \nu & \nu & 1-\nu & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1-2\nu}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1-2\nu}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1-2\nu}{2} \end{bmatrix}, \quad (7)$$

其中, \mathbf{D} 是位移矢量, ν 是泊松比, E 是杨氏模量. 电荷守恒的控制方程为

$$E = -\nabla V, \quad (8)$$

$$\nabla \cdot (\varepsilon_v \varepsilon_r E) = \rho_v, \quad (9)$$

其中, E 是电场, V 是电势, ρ_v 是空间电荷密度, ε_r 是相对介电常数, ε_v 是真空介电常数.

2.3 材料参数

PTFE 的介电常数很小, 而 CTE 却很大. 为了获得具有较小 CTE 和合适介电常数的复合材料, 在 PTFE 中加入 SSS 以降低 SiO_2/PTFE 复合介质

材料的 CTE, HSS 会进一步降低 SiO_2/PTFE 复合介质材料的介电常数. 表 1 整理了 PTFE, SiO_2 和空气的材料参数.

表 1 材料物性参数
Table 1. Physical parameters of materials.

材料	PTFE	SiO_2	空气
密度 $\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	2.10	2.20	—
热导率 $k/(\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$	0.24	1.40	—
比热容 $c/(10^3 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$	1.05	0.73	—
泊松比 ν	0.40	0.22	0
杨氏模量 E/GPa	0.28	70.0	—
CTE/ (10^{-6} K^{-1})	109	0.50	—
介电常数	2.05	3.50	1.00

2.4 边界条件

SiO_2/PTFE 复合介质材料的热通量边界条件如图 2 所示, 外部温度表示为 $T_{\text{ext}} = 293.15 + 5t$ [31], 垂直壁面上的传热系数 (图 2(a)) 表示为

$$h = \begin{cases} \frac{k}{L} \left(0.68 + \frac{0.67 Ra^{1/4}}{\left\{ 1 + [0.492k/(\mu c)]^{9/16} \right\}^{4/9}} \right), & Ra \leq 10^9, \\ \frac{k}{L} \left(0.825 + \frac{0.387 Ra^{1/6}}{\left\{ 1 + [0.492k/(\mu c)]^{9/16} \right\}^{8/27}} \right), & Ra \geq 10^9, \end{cases} \quad (10)$$

其中, L 是 SiO_2/PTFE 复合介质材料的长度, Ra 是瑞利数.

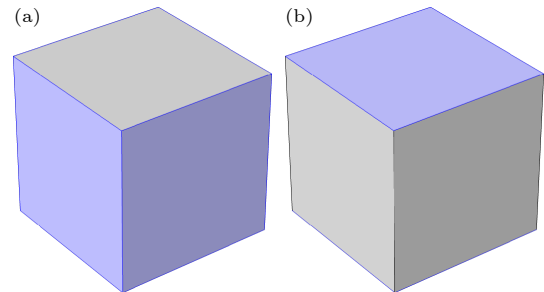


图 2 SiO_2/PTFE 复合介质材料的热通量边界条件示意图 (a) 垂直表面; (b) 上下表面

Fig. 2. Schematic diagram of heat flux boundary conditions for SiO_2/PTFE dielectric composite: (a) Vertical surface; (b) upper and lower surfaces.

上下表面的传热系数 (图 2(b)) 表示为

$$h = \begin{cases} \frac{0.54Ra^{1/4}k}{L}, & T > T_{\text{ext}}, 10^4 \leq Ra \leq 10^7, \\ \frac{0.15Ra^{1/3}k}{L}, & T > T_{\text{ext}}, 10^7 \leq Ra \leq 10^{11}, \\ \frac{0.27Ra^{1/4}k}{L}, & T \leq T_{\text{ext}}, 10^5 \leq Ra \leq 10^{10}. \end{cases} \quad (11)$$

线性弹性方程组的求解需要相关的固体力学边界条件. 在 SiO_2/PTFE 复合介质材料的上下表面施加 10 MPa 的载荷, 将固定约束添加到 SiO_2/PTFE 复合介质材料的下表面, 如图 3 所示. SiO_2/PTFE 复合介质材料的所有其他表面都被认为是自由边界条件, 它们会由于热膨胀而自由变形.

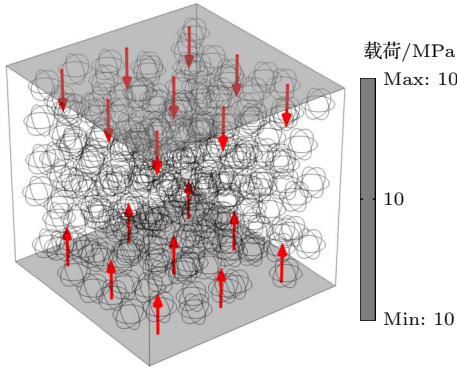


图 3 SiO_2/PTFE 复合介质材料的边界载荷和固定边界条件示意图

Fig. 3. Schematic diagram of boundary loading and fixed boundary condition for SiO_2/PTFE dielectric composite.

介电常数的求解需要相关的静电边界条件. 在 SiO_2/PTFE 复合介质材料的上表面施加 1 V 电位, 并在下表面添加接地边界条件. SiO_2/PTFE 复合介质材料由 390502 个非结构化四面体元素组成, 如图 4 所示.

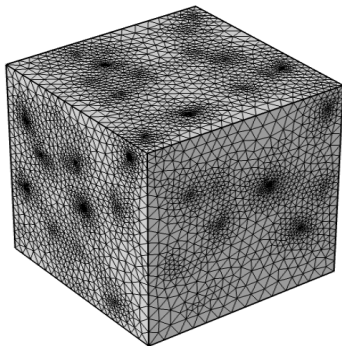


图 4 SiO_2/PTFE 复合介质材料应用非结构化四面体网格

Fig. 4. Schematic diagram of applied unstructured tetrahedral mesh for SiO_2/PTFE dielectric composite.

3 结果和讨论

3.1 SiO_2 填充量的影响

通过数值模拟分析 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数. SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE 由以下关系式计算:

$$\text{CTE} = \frac{\Delta L}{L\Delta T}, \quad (12)$$

其中, ΔL 为热膨胀位移, ΔT 为温度变化量, L 为材料的原始尺寸.

PTFE 和 SiO_2 的热膨胀位移分布如图 5 所示, 由于选择 SiO_2/PTFE 复合介质材料的下表面作为参考面, 上表面表现出大的热膨胀位移. 通过方程 (12) 计算得出 PTFE 和 SiO_2 的 CTE 分别为 1.2446×10^{-4} , $5.4 \times 10^{-7} \text{ K}^{-1}$. SSS 填充量 (体积分数) 分别为 10%, 15%, 20%, 25% 和 30% 的 SSS/PTFE 复合介质材料的热膨胀位移分布如图 6 所示. 由于 SiO_2 对 PTFE 的热膨胀具有强的阻碍作用, 且 SiO_2/PTFE 复合介质材料模型中间部分 SiO_2 的体积分数较大, 而边缘部分 SiO_2 的体积分数较小. 因此, SiO_2/PTFE 复合介质材料上表面中间的热膨胀位移小, 而边缘位置的热膨胀位移大. SSS/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数随 SSS 填充量的变化如图 7 所示, 当 SSS 填充量由 10% 增加至 30% 时, SSS/PTFE 复合介质材料的 CTE 由 $1.0738 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ 下降至 $7.5 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, 其介电常数由 2.19 增加至 2.48. 由于 SiO_2 的 CTE 非常小, 并且基体的热膨胀受到限制, 因此上述结果符合实际情况 [18]. PTFE 基体的热膨胀由于 SiO_2 随机分布形成物理交联作用而受到阻碍. 所以 SiO_2 的填充量越高, PTFE 的热膨胀受到的阻碍则越大, SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE 就越小.

由图 7(a) 可以看出, 当 SSS 填充量小于 20% 时, SiO_2/PTFE 复合介质材料 CTE 的计算结果与研究报道 [31] 的结果非常吻合. 当 SSS 填充量高于 20% 时, SiO_2/PTFE 复合介质材料 CTE 的计算结果与实验结果误差较大, 最大偏差为 1.8%. 这是由于 SiO_2/PTFE 复合介质材料的几何模型尺寸有限, 在内部区域 SiO_2 的体积分数要高于边界处 SiO_2 的体积分数, SiO_2 之间的距离越近, 相互作用越强, 因此数值模拟的结果比文献 [31] 中报道的数据略高. 图 7(b) 显示模拟的介电常数与文献 [31] 报道的数据基本相同, 最大偏差为 0.6%, 证明当前

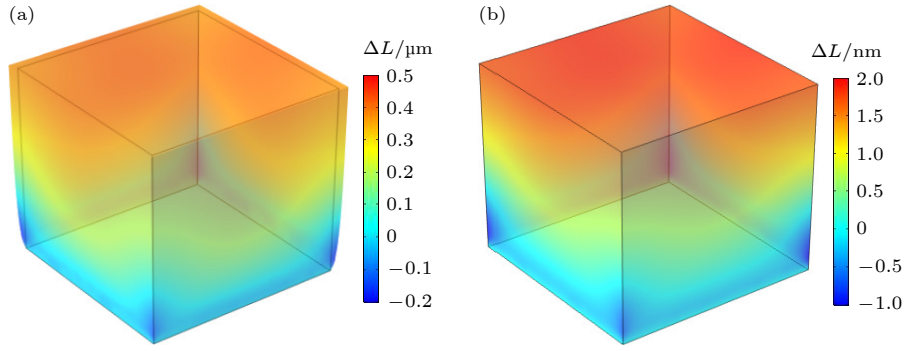

 图 5 Z轴位移分布示意图 (a) PTFE; (b) SiO₂

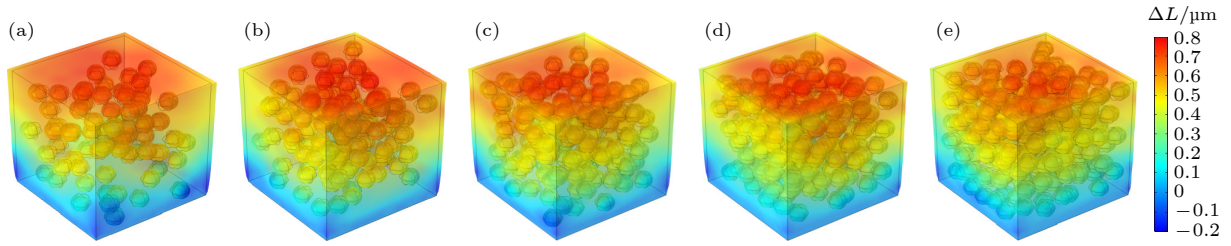
 Fig. 5. Schematic diagram of Z-axis displacement distribution: (a) PTFE; (b) SiO₂.


图 6 不同 SSS 填充量的 SSS/PTFE 复合介质材料的位移分布 (a) 10%; (b) 15%; (c) 20%; (d) 25%; (e) 30%

Fig. 6. Surface displacement distribution map of SSS/PTFE dielectric composite with different filling amounts of SSS: (a) 10%; (b) 15%; (c) 20%; (d) 25%; (e) 30%.

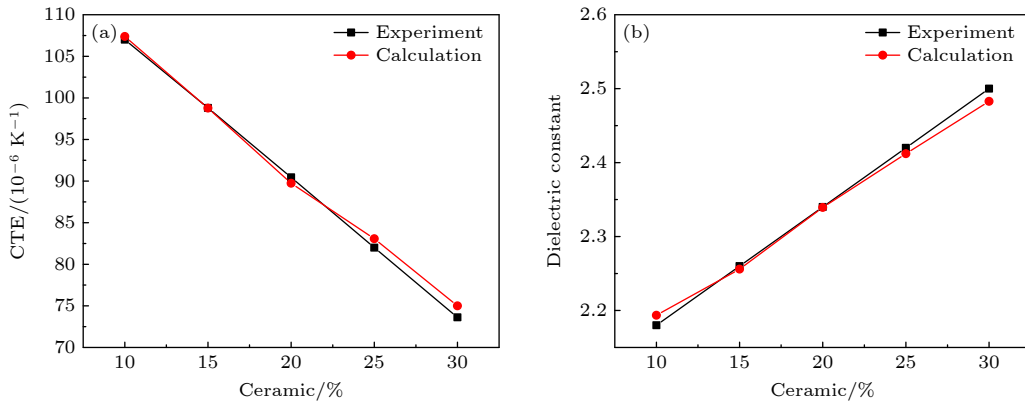


图 7 SSS/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数随 SSS 填充量的变化曲线 (a) CTE; (b) 介电常数

Fig. 7. CTE and dielectric constant variations of SSS/PTFE composites with SSS filler contents: (a) CTE; (b) dielectric constant.

模型可以准确地预测 SSS/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数.

为获得低介电常数, 将空气限制在 SSS 内制备 HSS, 构建 HSS 填充量 (体积分数) 在 10%—30% 内的 HSS/PTFE 复合介质材料的模型, 并计算其 CTE 和介电常数. HSS/PTFE 复合介质材料的位移分布如图 8 所示. HSS/PTE 复合介质材料的 CTE 和介电常数的变化曲线如图 9 所示, 当 HSS 填充量由 10% 增加至 30% 时, HSS/PTFE 复合介质材料的 CTE 由 $1.1047 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ 降低至 $8.488 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, 而介电常数由 2.06 增加至 2.17. HSS/PTFE 复合

介质材料模拟得到的 CTE 和介电常数与文献 [31] 的结果基本一致. CTE 的最大偏差为 1.3%, 介电常数的最大偏差为 0.42%, 进一步证实本模型预测 HSS/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数的准确性.

通过计算得到 HSS/PTFE 复合介质材料中的空气含量. 结果表明, 对于 HSS 填充量 (体积分数) 分别为 10%, 15%, 20%, 25% 和 30% 的 HSS/PTFE 复合介质材料, 其空气体积含量 (体积分数) 分别为 5.12%, 7.77%, 10.31%, 10.67% 和 12.83%. 随着 HSS 填充量的增加, HSS/PTFE 复合介质材料

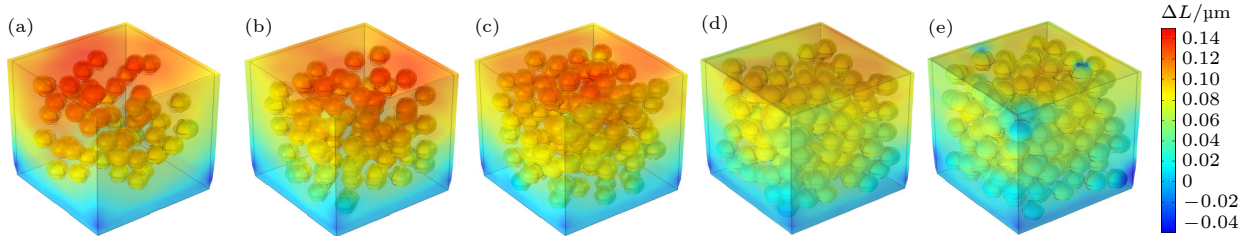


图 8 不同 HSS 填充量的 HSS/PTFE 复合介质材料的位移分布 (a) 10%; (b) 15%; (c) 20%; (d) 25%; (e) 30%

Fig. 8. Surface displacement distribution map of HSS/PTFE dielectric composite with different HSS filling amounts: (a) 10%; (b) 15%; (c) 20%; (d) 25%; (e) 30%.

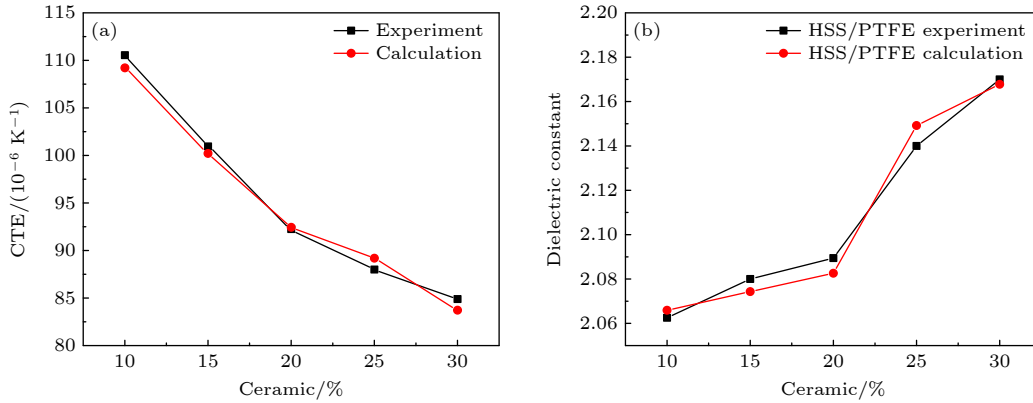


图 9 HSS/PTFE 复合介质材料的热膨胀系数和介电常数随 HSS 填充量的变化曲线 (a) CTE; (b) 介电常数

Fig. 9. CTE and dielectric constant variations of HSS/PTFE dielectric composites with HSS filler contents: (a) CTE; (b) dielectric constant.

中的空气含量增加. 由图 9 可以看出, HSS/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数随着 HSS 填充量的增加呈现非线性变化, 这是由于 HSS/PTFE 复合介质材料中存在空气. 其中, HSS 填充量为 20% 和 25% 的 HSS/PTFE 复合介质材料的介电常数由 2.08 增加至 2.15, 这是由于在 HSS/PTFE 复合介质材料中 SiO₂ 填料的填充量由 20% 增加至 25% 时, 空气含量只有略微增加, 由 10.31% 增加至 10.67%.

比较 SSS/PTFE 和 HSS/PTFE 复合介质材料, 发现相同 SiO₂ 填充量的 SSS/PTFE 复合介质材料的 CTE 较小, 这可能是由于 SSS/PTFE 复合介质材料的高密度所致. 此外, HSS/PTFE 复合介质材料的介电常数较小, 可能是由于引入了空气, 而空气的介电常数仅为 1. 由于 SSS 的数据与实验结果的匹配程度较高, 且 SSS 在实际应用中更通用, 因此后面的研究工作都采用 SSS.

3.2 SiO₂ 显微结构的影响

SiO₂/PTFE 复合介质材料的热性能受界面性

质、聚合物和填料的固有性能以及填料形状的影响很大^[32]. 通过构建 SiO₂ 填充量 (体积分数) 为 5% 的 SiO₂/PTFE 复合介质材料模型探讨 SiO₂ 填料显微结构对其 CTE 的影响规律. SiO₂ 显微结构有多种, 包括球状、纤维状和薄片状. SiO₂ 纤维和薄片的长径比分别定义为直径与高度之比和高度与宽度之比, 而 SiO₂ 球的长径比为 1. SiO₂ 纤维的长径比分别为 5, 10, 20, 其直径为 1 μm, 长度分别设为 5, 10, 20 μm. SiO₂ 薄片的长径比分别为 5, 10, 20, 其长度和宽度均为 1 μm, 高度分别设为 5, 10, 20 μm. 纤维状 SiO₂/PTFE 复合介质材料和片状 SiO₂/PTFE 复合介质材料的位移分布分别如图 10 和图 11 所示, 其 CTE 值见图 12. 由于纤维状和薄片状 SiO₂ 在 Y 轴和 Z 轴的长度均相同, 在 X 轴的长度大于 Y 轴和 Z 轴的长度, 因此纤维状和薄片状 SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE_y 和 CTE_z 表现为各向同性, 而 CTE_x 表现为各向异性. 球形 SiO₂ 在 X, Y, Z 轴的长度均相等, 因此球形 SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE_x, CTE_y 和 CTE_z 表现为各向同性. SiO₂ 的长径比越大, SiO₂/PTFE 复合介质材料在纤维排

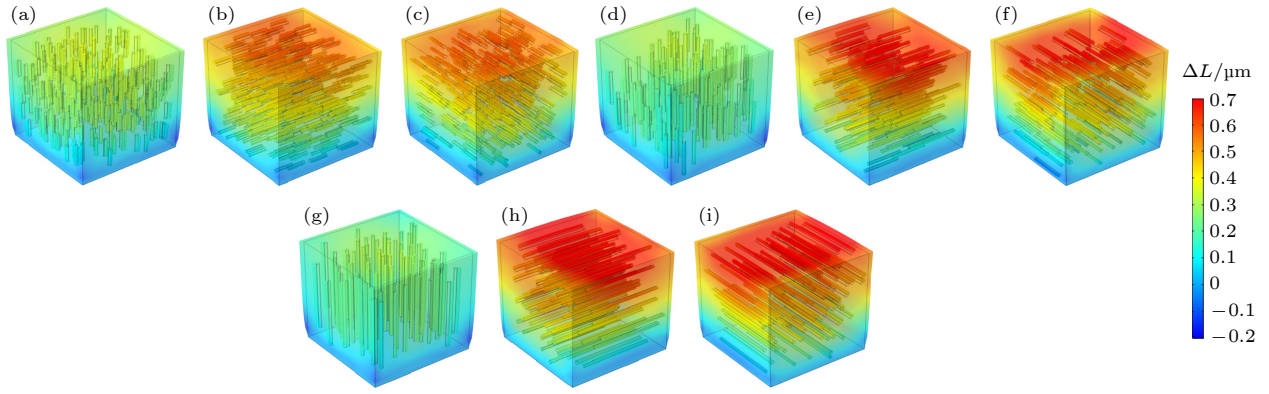


图 10 不同长径比的纤维状 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 X, Y, Z 轴位移分布 (a)–(c) 长径比为 5; (d)–(f) 长径比为 10; (g)–(i) 长径比为 20

Fig. 10. X, Y, Z axes displacement distribution of SiO_2/PTFE dielectric composite with different aspect ratios of SiO_2 fiber: (a)–(c) Aspect ratio of 5; (d)–(f) aspect ratio of 10; (g)–(i) aspect ratio of 20.

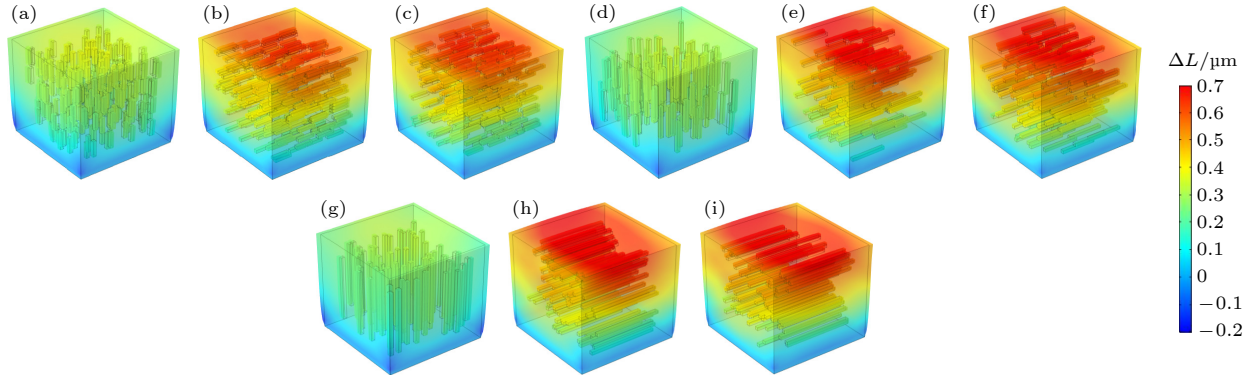


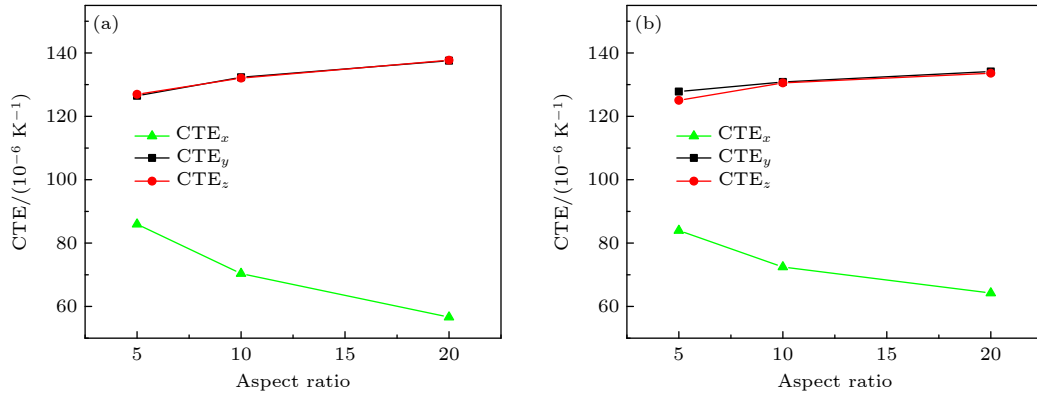
图 11 不同长径比的薄片状 SiO_2/PTFE 复合介质材料 X, Y, Z 轴位移分布 (a)–(c) 长径比为 5; (d)–(f) 长径比为 10; (g)–(i) 长径比为 20

Fig. 11. X, Y, Z axes displacement distribution of SiO_2/PTFE dielectric composite with different aspect ratios of SiO_2 flake: (a)–(c) Aspect ratio of 5; (d)–(f) aspect ratio of 10; (g)–(i) aspect ratio of 20.

列方向的性能越好. 由于 SiO_2/PTFE 复合介质材料中纤维状和薄片状 SiO_2 的排列方式平行于 X 轴, SiO_2 在 X 轴方向可有效阻碍 PTFE 的热膨胀, 因此 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE_x 随 SiO_2 长径比的增加而减小. SiO_2 长径比对复合介质材料横向 CTE (即 CTE_x) 和纵向 CTE (即 CTE_y) 的影响是完全相反的 [33], CTE_y 和 CTE_z 表现为各向同性, 因此 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE_y 和 CTE_z 随 SiO_2 长径比的增加而增加.

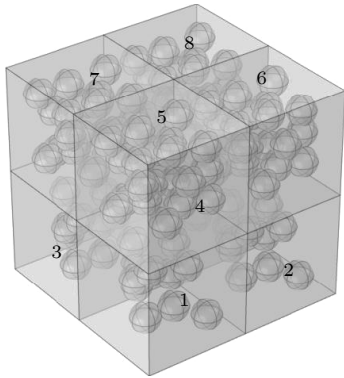
由图 12 可知 当纤维状 SiO_2 的长径比由 5 增加至 20 时, SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE_y 和 CTE_z 由 $1.2649 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ 增加至 $1.3756 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$, CTE_x 由 $8.595 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ 降低至 $5.664 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$. 对于 SiO_2 薄片, 长径比由 5 增加至 20 时, SiO_2/PTFE

复合介质材料的 CTE_y 和 CTE_z 由 $1.278 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ 增加至 $1.3414 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$, CTE_x 由 $8.396 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ 降低至 $6.423 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$. 当长径比为 5 时, 薄片状 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE_x 值小于纤维状 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE_x 值. 随着长径比的增加, 薄片状 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE_x 逐渐大于纤维状 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE_x . 基于 SiO_2 填充量 (体积分数) 为 5% 制备的 SiO_2/PTFE 材料的 CTE 为 $1.1644 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$, 而长径比为 20 的纤维状和薄片状 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE_x 值较小, 分别为 $5.664 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ 和 $6.423 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, 这是由于 SiO_2 纤维和薄片是各向异性的, 而 SiO_2 球具有各向同性的特性 [33,34].

图 12 不同 SiO₂ 长径比 SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE (a) 纤维状 SiO₂; (b) 薄片状 SiO₂Fig. 12. CTE of SiO₂/PTFE dielectric composite with different aspect ratios of SiO₂ filler: (a) SiO₂ fiber; (b) SiO₂ flake.

3.3 SiO₂ 分布均匀性的影响

本节通过构建 SiO₂ 填充量 (体积分数) 为 15% 的 SiO₂/PTFE 复合介质材料模型探讨 SiO₂ 分布均匀性对其 CTE 的影响规律. 首先, 建立 PTFE 基体模型, 将 PTFE 模型平均划分为 8 份, 如图 13 所示. SiO₂ 球在 PTFE 基体中的分布不均匀, 其中 4 部分为 10%, 另外 4 部分为 20%. 具有 10% 和 20% SSS 的 SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE 分别计算为 $1.0733 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ 和 $9.047 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$.

图 13 SiO₂/PTFE 复合介质材料的 SiO₂ 分布模型Fig. 13. SiO₂ distribution model of SiO₂/PTFE dielectric composite.

SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE 列于表 2. 从表 2 可知, 当 1—4 号分布 20% 且 5—8 号分布 10% 时, SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE 最小, 为 $9.678 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$; 当 1—4 号分布 10% 且 5—8 号分布 20% 时, SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE 最大, 为 $1.0134 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$. 当将 1—4 号中的一个由 20% 替换为 10% 时, 即将 2 号替换为 10%, 且 5—8 号依次替换为 20%, SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE 基本没有变化, 分别为 $9.785 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$,

$9.805 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, $9.781 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, $9.780 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$.

这说明 SiO₂/PTFE 复合介质材料上半部分的随机分布不影响其 CTE. 当将 1—4 号中的两个由 20% 替换为 10% 时, 则存在两种情况: 一是四条边上的 5 号和 7 号替换为 20%, 2 号和 4 号替换为 10%, 其 CTE 为 $9.871 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$; 二是对角线上的 6 号和 8 号替换为 20% 且 5 号和 7 号替换为 10%, 其 CTE 为 $9.909 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$. 当将 1—4 号中的三个由 20% 替换为 10% 时, 仅存在一种情况: 将上半部分的 6—8 号替换为 20%, 且 2 号替换为 10%, 其 CTE 为 $1.0002 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$. 由于底部的 SiO₂ 球充当支撑作用, 因此底部 SiO₂ 球较密集的 SiO₂/PTFE 复合介质材料具有更低的 CTE.

表 2 SiO₂/PTFE 复合介质材料的 CTE
Table 2. CTE of SiO₂/PTFE dielectric composite.

不同的分布情况	CTE/(10 ⁻⁶ K ⁻¹)
1, 2, 3, 4 分布 10%; 5, 6, 7, 8 分布 20%	101.34
1, 2, 3, 4 分布 20%; 5, 6, 7, 8 分布 10%	96.78
1, 3, 4, 5 分布 20%; 2, 6, 7, 8 分布 10%	97.85
1, 3, 4, 6 分布 20%; 2, 5, 7, 8 分布 10%	98.05
1, 3, 4, 7 分布 20%; 2, 5, 6, 8 分布 10%	97.81
1, 3, 4, 8 分布 20%; 2, 5, 6, 7 分布 10%	97.80
1, 3, 5, 7 分布 20%; 2, 4, 6, 8 分布 10%	98.71
1, 3, 6, 8 分布 20%; 2, 4, 5, 7 分布 10%	99.09
1, 6, 7, 8 分布 20%; 2, 3, 4, 5 分布 10%	100.02

3.4 成型工艺的影响

在 SiO₂/PTFE 复合介质材料上表面施加 5, 10, 15, 20 MPa 载荷, 研究成型工艺对其 CTE 的

影响规律. SiO_2/PTFE 复合介质材料上表面热膨胀位移随时间的变化如图 14 所示.

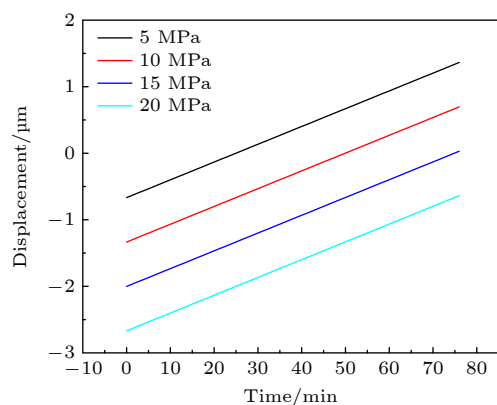


图 14 SiO_2/PTFE 复合介质材料的位移随时间的变化
Fig. 14. Displacement variations of SiO_2/PTFE dielectric composite with different time.

从图 14 可以看出, 在不同载荷下, SiO_2/PTFE 复合介质材料的热膨胀位移曲线呈现平行状态. 这表明在热膨胀过程中, SiO_2/PTFE 复合介质材料上表面的热膨胀位移相同, 利用方程 (12) 计算得出 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE 也相同. 这是由于不同的成型工艺没有改变 SiO_2/PTFE 复合介质材料成型的微观结构, 因此, SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE 也没有变化.

4 结 论

采用稳态和瞬态有限元方法对 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数进行数值研究. 详细研究 SSS 和 HSS 填充量、 SiO_2 的显微结构、均匀性分布和成型参数对 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数的影响规律. 结果表明, SSS (HSS)/PTFE 复合介质材料的 CTE 和介电常数与报道的结果符合良好, 30% SSS/PTFE 的 CTE 最小, 为 $7.5 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, 而 10% HSS/PTFE 的介电常数最小, 为 2.06. 不同微观结构的 SiO_2 对 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE 具有明显影响, 这归因于片状和纤维状 SiO_2 的各向异性特性. 研究发现, 由于底部 SiO_2 的支撑作用, 底部 SiO_2 分布较密集的复合介质材料具有较低的 CTE. 此外, 成型工艺对 SiO_2/PTFE 复合介质材料的 CTE 几乎没有影响, 这是由于 SiO_2/PTFE 复合介质材料的微观结构在成型过程中没有变化.

参考文献

- [1] Sebastian M T, Jantunen H 2010 *Int. J. Appl. Ceram. Technol.* **7** 415
- [2] Sadeghifar H, Djilali N, Bahrami M 2014 *J. Power Sources* **248** 632
- [3] Feng X, Diao X S, Shi Y J, Wang H Y, Sun S H, Lu X H 2006 *Wear* **261** 1208
- [4] Murali K P, Rajesh S, Prakash O, Kulkarni A R, Ratheesh R 2009 *Compos. Pt. A: Appl. Sci. Manuf.* **40** 1179
- [5] Yuan Y, Yin Y T, Yu D D, Lin H D, Wang J, Tang B, Li E Z 2017 *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **28** 3356
- [6] Tang A G, Wang M L, Huang W, Wang X L 2015 *Surf. Coat. Technol.* **282** 121
- [7] Luo F C, Tang B, Yuan Y, Fang Z X, Zhang S R 2018 *Appl. Surf. Sci.* **456** 637
- [8] Zheng L, Zhou J, Shen J, Qi Y Y, Li S, Shen S 2018 *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **29** 17195
- [9] Ren J Q, Yang P, Peng Z J, Fu X L 2021 *Ceram. Int.* **47** 20867
- [10] Jiang P F, Bian J J 2019 *Int. J. Appl. Ceram. Technol.* **16** 152
- [11] Chen W Z, Yu Y L, Gu Y P, Ji Y C, He J J, Li Z D, Zheng G Y, Wang J L, Wu Y, Long F 2022 *Compos. Pt. A: Appl. Sci. Manuf.* **154** 106783
- [12] Yuan Y, Li Z T, Cao L, Tang B, Zhang S R 2019 *Ceram. Int.* **45** 16569
- [13] Dai J H, Liang F, Zhang R, Lu W Z, Fan G F 2022 *Ceram. Int.* **48** 2362
- [14] Murali K P, Rajesh S, Prakash O, Kulkarni A R, Ratheesh R 2010 *Mater. Chem. Phys.* **122** 317
- [15] Wang J, Liu S H, Zhou M, Hao H S, Zhai J W 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 218101 (in Chinese) [王娇, 刘少辉, 周梦, 郝好山, 翟继卫 2020 物理学报 **69** 218101]
- [16] Peng H Y, Ren H S, Dang M Z, Zhang Y, Yao X G, Lin H X 2018 *Ceram. Int.* **44** 16556
- [17] Sasikala T S, Sebastian M T 2016 *Ceram. Int.* **42** 7551
- [18] Chen Y C, Lin H C, Lee Y D 2003 *J. Polym. Res.* **10** 247
- [19] Kemaloglu S, Ozkoc G, Aytac A 2010 *Polym. Compos.* **31** 1398
- [20] Zhou W Y, Wang C F, Ai T, Wu K, Zhao F J, Gu H Z 2009 *Compos. Pt. A: Appl. Sci. Manuf.* **40** 830
- [21] Zhou H, Wei D Y, Fan Y, Chen H, Yang Y S, Yu J J, Jin L G 2016 *Mater. Sci. Eng. B: Adv. Funct. Solid: State Mater.* **203** 13
- [22] Jiang Z H, Yuan Y 2018 *Mater. Res. Express* **5** 066306
- [23] Ndayishimiye A, Tsuji K, Wang K, Bang S H, Randall C A 2019 *J. Eur. Ceram. Soc.* **39** 4743
- [24] Liu K, Sun H R 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 028501 (in Chinese) [刘康, 孙华锐 2020 物理学报 **69** 028501]
- [25] Li W Z, Wang J 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 114401 (in Chinese) [黎威志, 王军 2012 物理学报 **61** 114401]
- [26] Shao C R, Li H Y, Wang J, Xia G D 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 236501 (in Chinese) [邵春瑞, 李海洋, 王军, 夏国栋 2021 物理学报 **70** 236501]
- [27] Shi X L, Aghdam M K H, Ansari R 2019 *Proc. Inst. Mech. Eng. Pt. L: J. Mater. Design Appl.* **233** 1843
- [28] Hassanzadeh-Aghdam M K, Ansari R 2020 *Mater. Chem. Phys.* **252** 123273
- [29] Chawla N, Deng X, Schnell D R M 2006 *Mater. Sci. Eng. A: Struct. Mater. Prop. Microstruct. Process.* **426** 314

- [30] Gurram S P, Zhao J H, Edwards D R 2011 *J. Mater. Sci.* **46** 101
 [31] Han K K, Zhou J, Li Q Z, Shen J, Qi Y Y, Yao X P, Chen W 2020 *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **31** 9196
 [32] Kang S, Hong S I, Choe C R, et al. 2001 *Polymer* **42** 879
 [33] Pan J, Bian L C 2017 *Acta. Mech.* **228** 4341
 [34] La Carrubba V, Butters M, Zoetelief W 2008 *Polym. Bull.* **59** 813

Numerical simulation of thermal and dielectric properties for SiO₂/polytetrafluoroethylene dielectric composite^{*}

Liu Yue-Li¹⁾ Zhao Si-Jie¹⁾ Chen Wen²⁾ Zhou Jing^{2)†}

1) (State Key Laboratory of Silicate Materials for Architectures, School of Materials Science and Engineering, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, China)

2) (State Key Laboratory of Advanced Technology for Materials Synthesis and Processing, School of Materials Science and Engineering, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, China)

(Received 27 April 2022; revised manuscript received 7 July 2022)

Abstract

Coefficient of thermal expansion (CTE) and dielectric constant for the SiO₂/polytetrafluoroethylene (SiO₂/PTFE) dielectric composite are mainly influenced by their filling content, and how to accurately predict the effect is still a great challenge until now. In this work, the CTE and dielectric constant of SiO₂/PTFE dielectric composite are systematically investigated by numerical simulation. The results show that with the increase of SiO₂ content, CTE of SiO₂/PTFE dielectric composite decreases, and the dielectric constant increases, which are in good agreement with the data reported in the literature (Han K K, Zhou J, Li Q Z, Shen J, Qi Y Y, Yao X P, Chen W 2020 *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **31** 9196). The 30% (volume fraction) solid SiO₂ sphere (SSS)/PTFE dielectric composite is the smallest CTE of $7.5 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, while 10% (volume fraction) hollow solid sphere (HSS)/PTFE possesses the smallest dielectric constant of 2.06. The CTE of SiO₂/PTFE dielectric composite may decrease when the SiO₂ distribution is dense at the bottom. The large aspect ratio of SiO₂ filler may reduce CTE_x of SiO₂/PTFE dielectric composite. The molding parameters have little effect on the thermal expansion coefficient of the solid SiO₂/PTFE composite dielectric material. This work provides a clear insight into the controlling of CTE and dielectric constant of SiO₂/PTFE dielectric composite by adjusting its microstructure.

Keywords: numerical simulation, coefficient of thermal expansion, dielectric constant

PACS: 02.70.Dh, 44.10.+i, 77.22.-d

DOI: 10.7498/aps.71.20220839

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12174298), the Key Projects of Natural Science Foundation of Hubei Province, China (Grant No. 2019CFA044), the Hainan Provincial Joint Project of Sanya Yazhou Bay Science and Technology City, China (Grant No. 20201g0158), and the National Natural Science Foundation of Shenzhen City, China (Grant No. JCYJ20210324135002007).

[†] Corresponding author. E-mail: zhoujing@whut.edu.cn

SiO₂/聚四氟乙烯复合介质材料热性能和介电性能的数值模拟

刘曰利 赵思杰 陈文 周静

Numerical simulation of thermal and dielectric properties for SiO₂/polytetrafluoroethylene dielectric composite

Liu Yue-Li Zhao Si-Jie Chen Wen Zhou Jing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 210201 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220839

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220839>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

神经微管振动产生纳米尺度内电磁场作用

Nanoscale electromagnetic field interaction generated by microtubule vibration in neurons

物理学报. 2021, 70(15): 158703 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210421>

大功率热平衡感应耦合等离子体数值模拟及实验研究

Numerical simulation and experimental study of high-power thermal equilibrium inductively coupled plasma

物理学报. 2021, 70(9): 095204 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201610>

地下黏弹性介质波动方程及波场数值模拟

Wave equation for underground viscoelastic media and wavefield numerical simulation

物理学报. 2021, 70(14): 149102 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210005>

速度对聚四氟乙烯摩擦系数影响的分子动力学模拟

Effect of velocity on polytetrafluoroethylene friction coefficient using molecular dynamics simulation

物理学报. 2019, 68(17): 176801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190495>

化学复合率对激发赤道等离子体泡影响的数值模拟

Numerical simulation of recombination rate effect on development of equatorial plasma bubbles

物理学报. 2019, 68(19): 199401 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190173>

三维电磁扩散场数值模拟及磁化效应的影响

Three-dimensional numerical simulation of electromagnetic diffusion problem and magnetization effects

物理学报. 2019, 68(3): 030201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181567>