

ارزیابی خواص الکتریکی، مکانیکی و حرارتی نانو کامپوزیت سیلیکونی به عنوان عایق پوششی الکتریکی

میترا زارع^۱، مرتضی احسانی^۲، امیرعباس شایگانی اکمل^۳، رامین خواجهی^۱، داود زارعی^۱

۱. مهندسی پلیمر، گروه مهندسی پلیمر، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران جنوب، تهران، ایران

۲. پژوهشکده فرایند پلیمر، پژوهشگاه پلیمر و پتروشیمی ایران، تهران، ایران

۳. دانشکده مهندسی برق و کامپیوتر، دانشکده فنی، دانشگاه تهران، تهران، ایران

تاریخ دریافت:

۱۴۰۱/۰۲/۲۸

تاریخ پذیرش:

۱۴۰۱/۰۴/۲۲

چکیده

لاستیک سیلیکونی (SR) پوشش عایق ولتاژ بالا است، اما خواص مکانیکی ضعیفی دارد. افزودن نانوذرات روشی امیدوارکننده برای مقابله با این مشکل است. در این مطالعه، ارزیابی خواص نانوذرات SiC و SiO_2 ، Al_2O_3 ، MgO در مقادیر ۰ و ۲ و ۴ و ۶ درصد وزنی در ساختار لاستیک سیلیکونی از طریق پراکنش ذرات درون ماتریس سیلیکونی و پخت آمیزه صورت پذیرفت. آزمونهای مکانیکی، الکتریکی و آزمونهای آنالیز حرارتی دینامیکی- مکانیکی برای مطالعه رفتار نمونه‌ها صورت پذیرفت. نتایج نشان داد که حضور نانوذرات حتی در مقادیر جزئی باعث افزایش استحکام و ازدیاد طول در شکست گردید و تنها استثنا در این خصوص، حضور نانوذرات SiC در مقادیر ۴ و ۶ درصد وزنی بود که در آنها کاهش ازدیاد طول در نقطه شکست مشاهده شد. مقاومت الکتریکی SR با اختلاط مقدار کمی از نانوذرات افزایش یافت. نتایج آزمونهای پلاریزاسیون نشان داد که افزودن SiC منجر به کاهش جریان پلاریزاسیون تا حدود 200 pA در مقایسه با دیگر نمونه‌ها می‌گردد. آزمون استحکام دی الکتریک نشان داد که ساختار حاوی نانو ذرات SiO_2 و Al_2O_3 و ۲ درصد نانو ذرات SiC بالاترین میزان استحکام دی الکتریک را دارند. آزمونهای آنالیز حرارتی دینامیکی- مکانیکی نشان دادند که مدول ذخیره و دمای انتقال شیشه ای نانو کامپوزیت های حاصله به ترتیب تا ۷ مگا پاسکال و حدود ۵۰ درجه سانتیگراد افزایش نسبت به نمونه خالص داشتند. آزمون تجزیه گرما وزنی نشان دهنده ۱۰۰ درجه سانتیگراد افزایش در دمای تخریب و در نتیجه پایداری حرارتی نانو کامپوزیت ها در مقایسه با سیلیکون خالص بود.

نانو کامپوزیت؛ لاستیک سیلیکونی؛ نانو ذرات؛ عایق الکتریکی؛ پایداری حرارتی

واژگان کلیدی

Investigation of electrical, mechanical and thermal properties of silicone nanocomposites as electrical coating insulation

Mitra Zare¹, Morteza Ehsani^{1,2}, Amir Abbas Shayegani Akmal³, Ramin Khajavi¹, Davood Zaarei¹

1. Department of Polymer Engineering, Faculty of Engineering, South Tehran Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran.

2. Department of Polymer Processing, Iran Polymer and Petrochemical Institute, P.O. Box 149657-115, Tehran, Iran.

3. School of Electrical and Computer Engineering, College of Engineering, University of Tehran, Tehran, Iran.

Abstract

Silicone rubber (SR) is a high voltage insulation coating, but has poor mechanical properties. Adding nanoparticles is a promising way to deal with this problem. In this study, evaluation of the presence of SiO₂, Al₂O₃, MgO and SiC nanoparticles in the amounts of 0, 2, 4 and 6% by weight in the structure of silicone rubber was done through the distribution of particles within the silicon matrix and simultaneous curing. Mechanical electrical and dynamic-mechanical thermal analysis tests were performed to study the behavior of the prepared samples. Results showed that the presence of nanoparticles even in small amounts increased the strength and elongation at break and the only exception in this regard was the presence of SiC nanoparticles at 4 and 6% by weight in which a decrease in this property was observed. The electrical resistance of SR increased with the mixing of small amounts of nanoparticles. The results of polarization tests showed that the addition of SiC reduced the polarization current to about 200 pA compared to other samples. Dielectric breakdown test showed that the structures containing SiO₂ and Al₂O₃ and 2% SiC nanoparticles had the highest dielectric strength. Dynamic-mechanical thermal analysis tests also showed that the storage modulus and glass transition temperature of the resulting nanocomposites increased up to 7 MPa and about 50 ° C, respectively, The thermogravimetric analysis showed a 100 ° C increase in the degradation temperature and as a result, the thermal stability of the nanocomposites was superior to that of pure silicon.

Keywords

Nanocomposite; Silicone rubber; electrical insulator; nanoparticle; thermal stability

۱- مقدمه

در گذشته عایق های مورد استفاده در فضای باز از مواد سرامیکی و شیشه ای ساخته می شدند. اما در حال حاضر، پلیمرهای مختلفی جهت تولید عایق های کامپوزیتی خطوط ایستگاه، توزیع و انتقال به کار برده می شوند [۱]. سیلیکون یک عایق پلیمری با آب گریزی قابل قبول، مقاومت الکتریکی بالا در واحد سطح، پیرشدگی طولانی مدت تحت تنش های محیطی، پایداری دی الکتریک خوب و هدایت الکتریکی کم است [۲-۳]. پلیمرهای سیلیکون به دلیل پیوندهای Si-O-Si در ساختار زنجیره پلیمری انعطاف پذیر هستند. این پیوند Si-O-Si می تواند این امکان را برای زنجیره ها ایجاد کند که هر گونه صورتبندی دلخواه را در نتیجه طول پیوند بلند (۱۶۳ pm)، استحکام پیوند بالا ($452 \sim \text{kJ mol}^{-1}$) و انرژی فعال سازی پایین چرخش پیوند Si-O-Si بگیرند. علاوه بر این، پایداری حرارتی عالی سیلیکون ها از بالا بودن استحکام پیوند آنها نشأت می گیرد. قوت این پیوند باعث ایجاد چندگانگی پیوندهای Si-O-Si و نهایتاً منجر به پایداری حرارتی پلیمر می شود. علی رغم این خواص خوب، خواص مکانیکی سیلیکونها در قالب یک پوشش یا ماده ساختاری ضعیف است [۴-۵]. اغتشاش در میدان الکتریکی محلی می تواند تخریب خواص الکتریکی و مکانیکی را تسریع و در نهایت تخلیه الکتریکی را ایجاد کند [۶].

نانوذرات/نانوپرکننده ها می توانند خواص مکانیکی الاستومرهای سیلیکونی و همچنین هدایت حرارتی و الکتریکی آنها را بهبود بخشد. درجه اثربخشی نانوپرکننده ها بر خواص پلیمرها به وضعیت پراکندگی نانوذرات در سراسر ماتریس پلیمری و همچنین به اندازه و شکل هندسی آنها بستگی دارد. یک پراکنش خوب نتیجه برهمکنش/چسبندگی مناسب فی ما بین پلیمر و نانو پرکننده است. استفاده از سیلیکا در هر دو مقیاس میکرو و نانو به عنوان پرکننده و تقویت کننده در ساختار پلیمرهای ترموست بررسی شده است [۷-۹]. تشکیل درجای دامنه های سیلیکا در نتیجه فرآیندهای سل-ژل نیز منجر به تولید نانو کامپوزیت های ترموست با پایداری حرارتی قابل قبول شده است [۱۰]. در سیستم های سیلیکونی، ماتریس پلی دی متیل سیلوکسان (PDMS) با نانوذراتی از انواع و هندسه مختلف برای خواص حرارتی و مکانیکی بالاتر تقویت شده است [۱۱-۱۳].

سیلیکا در مقیاس نانو با سطح ویژه $400-1000 \text{ m}^2/\text{g}$ برای افزایش خواص مکانیکی پلیمرها استفاده می شود [۱۴]. سیلیکا می تواند خواص فیزیکی پلیمرهای سیلیکونی را از طریق برهمکنش های بین مولکولی بهبود بخشد [۱۵]. علاوه، نانو ذرات سیلیکا در مقیاس کمتر از ۵ درصد وزنی باعث بهبود رفتار پیرشدگی ماتریس لاستیک

سیلیکونی عایق می شود [۱۶].

بطور معمول، برای افزایش ولتاژ از ۵۲۵ kV به ۱ MV در مواد عایق، هدایت الکتریکی بایستی با ضریب پنج کاهش یابد و به این منظور می توان مقادیر جزیی از نانوذرات اکسید فلزی مانند MgO را در بستر پلیمری پراکنده نمود [۱۷-۱۸]. نانوذرات MgO دارای سطح بسیار فعالی هستند که گونه های باردار را جذب می کند، بنابراین توزیع بار روی ذرات کاهش می یابد و نهایتاً منجر به پراکنش خوب ذرات در ماتریس پلیمری عایق می شود. هدایت نانو کامپوزیت به دست آمده حاوی مقادیر جزیی پرکننده (مثلاً کمتر از ۵ درصد وزنی) از نظر کمی یک مرتبه پایین تر از پلیمر خالص در میدان های الکتریکی با ولتاژ بالا است [۱۹]. حضور سیلیکون کاربید (SiC) در ساختار کامپوزیت به عنوان یک پرکننده و تقویت کننده باعث افزایش سختی و استحکام ساختار می شود و همچنین موجب افزایش عملکرد ضد خوردگی، کاهش ضریب انبساط حرارتی و افزایش هدایت حرارتی می گردد [۲۰]. در نانو کامپوزیت های پلی اتیلن شبکه ای (XLPE) حاوی نانو ذرات SiC به میزان ۱ و ۳ درصد وزنی، ولتاژ شکست ماده عایقی تحت عبور جریان مستقیم الکتریکی (DC) بهبود می یابد و از تجمع بار فضایی در نانو کامپوزیت ها جلوگیری می شود [۲۱-۲۲]. به عنوان یک نظریه کاملاً پذیرفته شده، وجود نانوذرات در ماتریس پلیمری مانعی برای تخریب پلیمرهای عایق از طریق به دام انداختن الکترون های پر انرژی می شود [۲۳]. در مهندسی برق پدیده ای قبل از شکست الکتریکی در مواد عایق می باشد و مسیری شبیه شاخه های یک درخت در عایق ایجاد می کند و از دلایل خرابی در کابل های فشار قوی و زیر زمینی می باشد. به طور کلی، پراکندگی درخت الکتریکی در ناحیه بین سطحی پلیمر/نانوپرکننده مشاهده می گردد. نانوذرات بزرگ باعث شکاف برداشتن الکتریکی در مواد عایق (درخت های الکتریکی) می شوند. در سیستم های حاوی مقادیر زیاد نانو ذره، کلوخه شدن نانوذرات درختان الکتریکی با مسیرهای بزرگ را بوجود می آورد که سطح مشترک پلیمر و نانوپرکننده ها را تضعیف می کند [۲۴].

بین میزان تخلخل و مقاومت الکتریکی در نانو کامپوزیت های پلیمری رابطه مستقیم وجود دارد. به طور کلی، کسر حجمی ذرات غیر عایق باید کوچکتر از آستانه شبکه شدگی (پرکولاسیون) تئوری باشد تا باعث کاهش تحرک بار یا کاهش هدایت جریان مستقیم (DC) در کامپوزیت های متشکل از نانوذرات شود. در چنین سیستم هایی، هدایت از طریق تونل زدن بین ذرات با فواصل کوتاه انجام می شود [۲۵]. برای مثال، آزمایش الکتریکی نانو کامپوزیت های پلی اتیلن با چگالی کم (LDPE) حاوی ۱ و ۳

بر حسب تخلخل به عنوان معیاری برای پیش‌بینی پتانسیل عایق نانوکامپوزیت‌ها مورد استفاده قرار گرفته است. در این راستا، آنالیز میکروسکوپی برای تبیین ارتباط خواص با ریزساختار و همچنین وضعیت پراکندگی نانوذرات در سیستم انجام شده است.

۲- بخش تجربی: مواد و روش

۲-۱- مواد

پلی دی متیل سیلوکسان (PDMS) بصورت سیلیکون رابر از کمپانی Huicheng Tiansheng New Materials (Jiangsu) Co., Ltd خریداری و به همان صورت مورد استفاده قرار گرفت. نانوذرات از US Research Nanomaterials خریداری شد و ویژگی‌های آنها در جدول ۱ ارائه شده است.

۲-۲- روش آماده سازی نمونه‌ها

در این تحقیق از آسیاب دو غلتکی Polymix ۲۰۰L ساخت کمپانی Schwabenthan برای مخلوط کردن لاستیک سیلیکونی و نانوذرات استفاده شد. دما روی ۴۰ C تنظیم شد. غیر از نمونه کنترل در بقیه نمونه‌ها مقدار SiO_2 ، ۵ درصد وزنی تعیین شد در حالی که سایر نانوذرات بر اساس جدول ۲ تغییر یافتند. نانو ذرات به صورت مرحله ای اضافه شده و اختلاط پس از افزودن هر نوع نانوذره به مدت ۵ دقیقه ادامه یافت. پس از مخلوط شدن نانوذرات، دی کیومیل پراکسید (DCP) به عنوان شروع کننده با مقدار ثابت ۲ phr (قسمت وزنی براساس ۱۰۰ قسمت وزنی از SR) اضافه شد و برای ۵ دقیقه دیگر مخلوط شد. پس از آن، نمونه‌ها به صورت ورق به ابعاد ۲۰×۲۰ mm با ضخامت ۲ mm تحت فشار پرس گرم در دمای ۱۷۰ °C به مدت ۷ دقیقه قرار گرفتند. نهایتاً، ورق‌ها به آرامی خنک شدند تا اثرات فرایندپذیری از بین بروند، سپس به اشکال مورد نیاز از ورق لاستیکی نانوکامپوزیت

درصد وزنی نانوذرات اکسید آلومینیوم (Al_2O_3) نشان داده است که Al_2O_3 اثر قابل توجهی بر روی مقاومت نانوکامپوزیت‌ها در برابر تشکیل درخت الکتریکی دارد. علاوه بر این، فعالیت تخلیه جزئی نانوکامپوزیت‌ها در رابطه با تشکیل درخت در مقایسه با تخلیه LDPE خالص ضعیف تر بوده است که از تخلخل نانوکامپوزیت تاثیر پذیرفته است [۲۶]. با توجه به موارد فوق، چندین گزارش در مورد توسعه نانوکامپوزیت‌های مبتنی بر PDMS وجود دارد که به عنوان عایق الکتریکی عمل می‌کنند، به عنوان مثال، کابل‌هایی که در روکش آنها یک نانوذره برای افزایش خواص مکانیکی، حرارتی یا الکتریکی گنجانده شده است. با این حال، ساخت نانوکامپوزیت PDMS که سطح رضایت بخشی از کل خواص فوق را نشان دهد با ترکیب دو یا چند نانوذره امکان پذیر است [۲۶-۱۷].

در پژوهش‌های قبل، اثر یک یا دو نانو ذره در ماتریس پلیمری مطالعه و برخی از خواص آنها مورد بررسی قرار گرفته است [۲۶-۱۷]. در این مطالعه، بررسی هم افزایی چند نانوذره بر پایه اکسیدهای فلزی برای به دست آوردن نانوکامپوزیت‌های سیلیکونی مهندسی جهت کاربردهای عایق الکتریکی، پیشنهاد شده است. مجموعه ای از نانوکامپوزیت‌های حاوی نانوذرات SiO_2 ، Al_2O_3 ، MgO و SiC درون ماتریس لاستیک سیلیکون در آسیاب دو غلتکی تهیه و ترکیبات حاصل شد و آزمایش‌هایی نظیر استحکام کششی و آنالیز گرما وزن سنجی، (TGA)، آنالیز حرارتی مکانیکی دینامیکی (DMTA)، مقاومت الکتریکی حجمی و سطحی، جریان پلاریزاسیون و استحکام شکست بر روی ترکیبات پخت شده انجام شد. هم چنین در این تحقیق، تخلخل نانوکامپوزیت‌ها از نظر تئوری محاسبه شده و همچنین برآورد مقاومت الکتریکی

جدول ۱. ویژگی‌های نانوذرات استفاده شده در این مطالعه

رنگ	مورفولوژی	APS ^b nm	Purity (%)	SSA ^a (m ² /g)
white	Nearly spherical	50	99	>19
white	Nearly Spherical	15-20	99.5	170-200
white	polyhedral	20	98	>60
Grayish white	Cubic	45-65	99	40-80

^a سطح مقطع ویژه (SSA)

^b متوسط اندازه ذره (APS)

جدول ۲. ترکیب شیمیایی، دانسیته و تخلخل نمونه های نانوکامپوزیتی تهیه شده با مقدار ثابت ۲ phr DCP

کد نمونه	سیلیکون رابر(phr)	SiO ₂ Phr	Al ₂ O ₃ phr	MgO phr	SiC phr	دانسیته ^a تئوری (g/cm ³)	تخلخل ^b (%)
SR	100	0	0	0	0	0.998	2.80
SR-SiO ₂	100	5	0	0	0	1.005	3.48
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(0)	100	5	1	1	0	1.012	4.15
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(2)	100	5	1	1	2	1.037	6.51
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(4)	100	5	1	1	4	1.050	7.63
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(6)	100	5	1	1	6	0.998	2.80

^a دانسیته تئوری با فرمول $\rho^T = (W_m/\rho_m + W_{NPI}/\rho_{NPI})^{-1}$ محاسبه می شود که ρ^T دانسیته تئوری نانوکامپوزیت ها، W_m جزء وزنی ماتریکس پلیمری و W_{NPI} جزء وزنی نانوکامپوزیت، ρ_m دانسیته SR و ρ_{NPI} دانسیته نانوکامپوزیت است [27].
^b تخلخل (%) تئوری با تقسیم ρ^T به توده نانوکامپوزیت محاسبه می شود [27].

برش داده شد. است. مقاومت سطحی با اعمال ولتاژ به سطح نمونه پلیمری و اندازه گیری جریان محاسبه شد. مقاومت حجمی براساس واحد اهم- سانتی متر، مقاومت الکتریکی یک مکعب ۱ سانتی متری از ماده عایق تعریف می شود. مطابق با ASTM D790-17 یا ASTM D257 نمونه ها بین دو الکترود قرار گرفتند که یکی از آنها الکترود محافظ برای جلوگیری از نشت سطح در اطراف لبه ها می باشد. جریان یک دقیقه پس از اعمال ولتاژ ۵۰۰ یا ۱۰۰۰ ولت DC خوانده شد. جریان عبوری از قسمت توده نمونه به کمک یک مدار پل از طریق تقویت کننده DC ثبت شد [۲۸]. اساس اندازه گیری مقاومت حجمی در شکل ۱ نشان داده شده است.

۲-۳-۴- اندازه گیری جریان پلاریزاسیون

اندازه گیری جریان پلاریزاسیون با اعمال جریان مستقیم با ولتاژهای ۱-۶ kV روی مواد عایق در مدت ۱۰۰۰۰ ثانیه انجام شد. جریان پلاریزاسیون نمونه های نانوکامپوزیت مطابق با استاندارد DIN EN 62631-3-1 اندازه گیری و خلاء بین الکترودها حفظ شد. سپس نمونه در فضای بین دو الکترود قرار گرفت. یک حلقه محافظ زمینی جریان های سطحی را به یک میدان الکتریکی همگن در داخل و در لبه های الکترودها هدایت و یک سنسور دمای دقیق را شناسایی و ثبت کرد. اساس اندازه گیری جریان پلاریزاسیون- دپلاریزاسیون (PDC) در شکل ۱ نشان داده شده است.

۲-۳-۵- آنالیز گرمایی دینامیکی مکانیکی (DMTA)

ویژگی های ترمو مکانیکی SR و نانوکامپوزیت های SR با استفاده از دستگاه آنالیز حرارتی مکانیکی دینامیکی DMA 1 مدل Star System ساخت شرکت METTLER TOLEDO سوئیس اندازه گیری شد. خواص ویسکوالاستیک نمونه های مکعب مستطیلی با ابعاد ۲ × ۹ × ۱۰ میلی متر بر اساس استاندارد

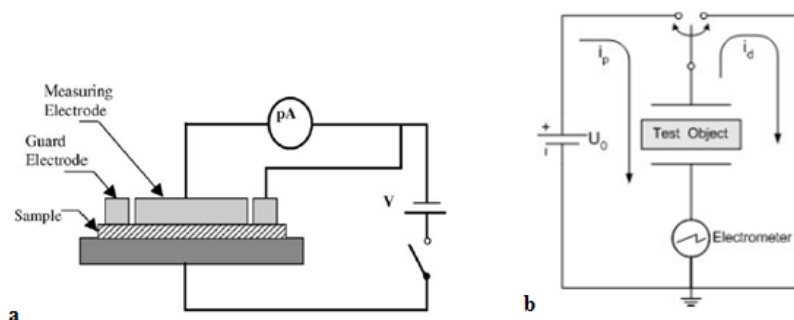
برش داده شد. **۲-۳-۲- شناسایی نمونه ها**
۲-۳-۱- شناسایی خواص مکانیکی
استحکام کششی و مدول با استفاده از دستگاه Universal Testing Machine ساخت شرکت Comotech با سرعت ۵۰۰ mm/min بر اساس استاندارد ASTM D 638 با نمونه های دمبلی شکل به ابعاد (عرض ۸ mm، طول گیج ۲۵ mm و ضخامت ۲ mm) اندازه گیری شد. اندازه گیری ها در دمای اتاق صورت گرفت. برای اندازه گیری سختی مقیاس (Shore-A) از دستگاه سختی سنج طبق استاندارد ASTM D2240 استفاده گردید.

۲-۳-۲- استحکام شکست دی الکتریک

استحکام دی الکتریک به عنوان تنش دی الکتریک یا گرادیان ولتاژ مورد نیاز برای ایجاد خرابی الکتریکی یا شکست در مواد تعریف می شود. استحکام شکست میدان الکتریکی DC نمونه ها با سیستم دو الکترودی و با اتصال الکترودها روی سطوح مقابل نمونه ها (ورق های مربعی با ضخامت ۲ mm) تعیین شد و اختلاف پتانسیل بین دو الکترود تا زمانی که شکست اتفاق بیفتد افزایش یافت. ارزیابی ها با فرو بردن نمونه و الکترودها در روغن عایق در درجه حرارت اتاق انجام شد. آزمایش بر اساس استاندارد IEC 60243 یا ASTM D149 با پنج نمونه برای هر ترکیب انجام شد [۲۸، ۲۲].

۲-۳-۳- مقاومت الکتریکی

مقاومت الکتریکی عایق های نانوکامپوزیتی بر حسب مقاومت حجمی و مقاومت سطحی با قرار دادن نمونه بین دو الکترود اندازه گیری شد. از قانون اهم برای محاسبه مقاومت الکتریکی نمونه تحت ولتاژ مشخص و جریان اعمال شده استفاده شده



شکل ۱. اندازه گیری خواص الکتریکی (a) مقاومت حجمی (b) جریان پلاریزاسیون [۴۹،۴۵]

۳- نتایج و بحث

۳-۱- آنالیز خواص مکانیکی

خواص مکانیکی و رفتار نمونه ها به صورت استحکام کششی، سختی، مدول و ازدیاد طول در شکست در جدول ۳ و اشکال ۲، ۳ و ۴ ارائه شده است. در شکل ۲ رفتار تنش- کرنش نمونه ها مورد بررسی قرار گرفته است. در شکل ۴a استحکام کششی و مدول نمونه ها به صورت نمودار ستونی گزارش شده و در شکل ۴b ازدیاد طول در نقطه شکست نمونه ها ارائه شده است. در جدول ۳ نیز مقادیر استحکام کششی، مدول و سختی به صورت عددی گزارش شده است. نتایج نشان می دهد که با افزایش محتوای SiC در SR مدول و سختی افزایش می یابد و در نمونه SR-SiO₂/A/M/SiC(6) بیشترین مقدار مدول گزارش شده است. استحکام کششی در نمونه های SR-SiO₂/A/M/SiC(0)-SR و SR-SiO₂/A/M/SiC(4) و SR-SiO₂/A/M/SiC(6) کاهش یافته است. کاهش در میزان استحکام کششی با افزایش نانوفیلر SiC به نمونه ها با یافته های دیگر همخوانی دارد [۲۹]، بطوری که درصد کم پرکننده SiC برای دستیابی به استحکام کششی بهتر کافی است. مقادیر بیشتر فیلرها معمولاً منجر به کلوخه شدن در ماتریس کامپوزیت می شود که توزیع تنش در طول اندازه گیری استحکام کششی را محدود می کند و در نتیجه عملکرد کششی نانوکامپوزیت ها را کاهش

ASTM E1640-13 و ASTM D5026 حالت تیرک یک سر گیردار تعیین گردید. نمونه ها در نگهدارنده نمونه از ۱۵۰- تا ۱۲۰ °C تحت سرعت گرمایش ۵ °C/min در فرکانس ثابت ۱ Hz قرار گرفتند. مدول ذخیره (E') و فاکتور اتلاف (δtan) ثبت و برای هر ترکیب اندازه گیری ها انجام گردید.

۳-۲- آنالیز گرما وزن سنجی

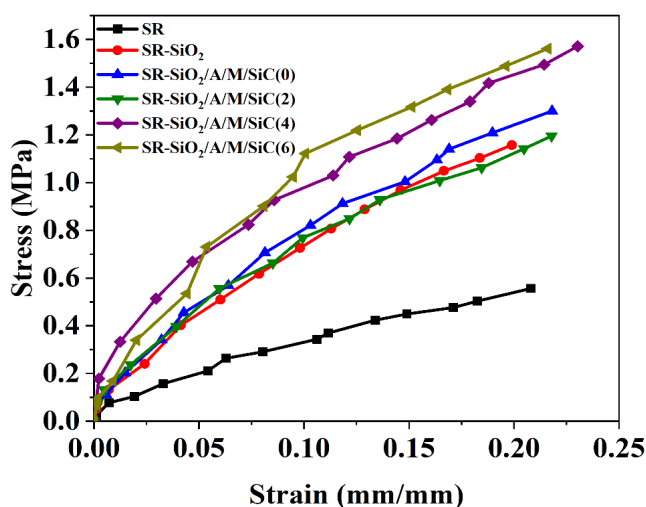
آنالیز گرما وزن سنجی (TGA) با ثبت کاهش وزن به عنوان تابعی از دمای تخریب صورت گرفت. جهت انجام آزمایش نمونه هایی با وزن حدود ۱۰ mg تا ۸ تا از دمای ۲۵ °C تا ۸۰۹ °C با نرخ گرمایش ثابت ۱۰ °C/min تحت گاز نیتروژن در دستگاه گرماوزن سنجی ساخت شرکت سوئیسی METTLER TOLEDO طبق استاندارد ASTM E1131-14 حرارت داده شدند.

۳-۲-۷- آنالیز میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)

برای ارزیابی پراکندگی و توزیع نانوذرات در ماتریس SR از میکروسکوپ الکترونی روبشی ساخت شرکت TESCAN استفاده شد. قبل از آنالیز SEM، یک لایه رسانا از Pt/Pd (چند نانومتر) به روش کندوپاشی برای بهبود رسانائیت و تصویربرداری با استفاده از سیستم EMITECH K450X روی نمونه ها اعمال شد.

جدول ۳. خواص مکانیکی نمونه های مطالعه شده

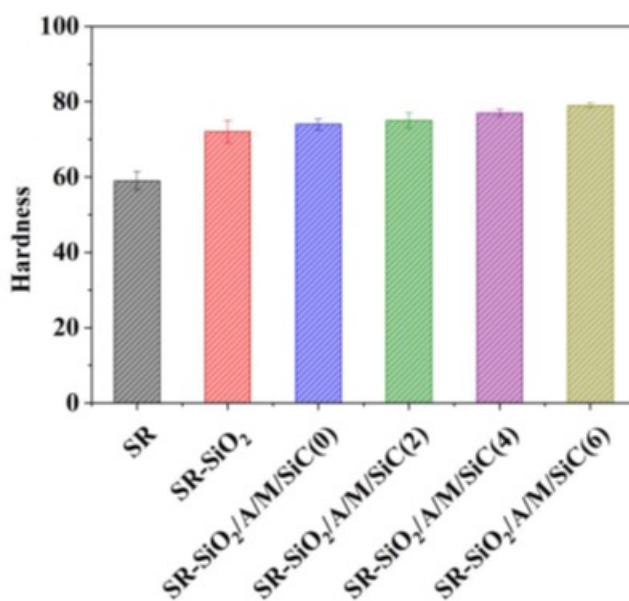
نمونه	استحکام کششی (MPa)	الاستیک مدول (MPa)	سختی Shore A
SR	4.58±0.1	4.78±0.1	559±1.3
SR-SiO ₂	5.67±0.0	9.98±0.4	72±2.4
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(0)	6.40±0.2	10.60±0.4	74±2.7
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(2)	4.34±0.5	13.56±0.5	75±1.9
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(4)	4.34±0.1	14.25±0.4	77±1.8
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(6)	4.57±0.3	16.78±0.1	79±2.1



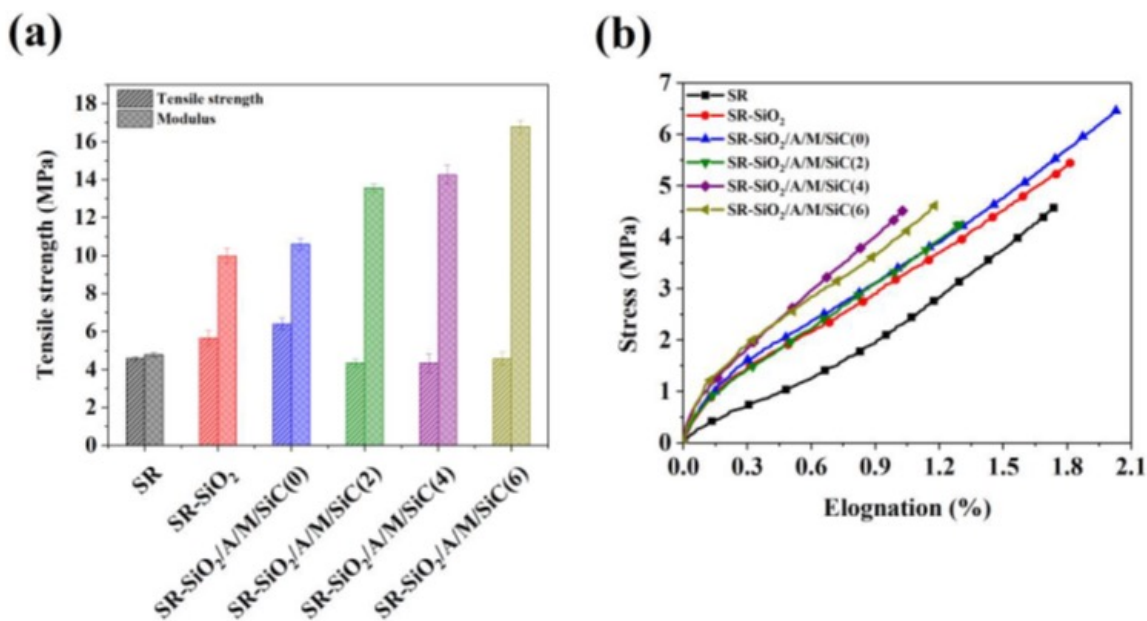
شکل ۲. رفتار تنش- کرنش در نمونه های مطالعه شده

از منظر دیگر، می توان به پیوند فیزیکی بین زنجیره های سیلیکونی و سیلیکا توجه نمود [۳۳]. در نتیجه پیوند هیدروژنی قوی بین گروه های هیدروکسیل ماتریس پلیمری و گروه های Si-OH سیلیکا، حرکت زنجیره ای محدود شده است که منجر به افزایش استحکام کششی در نمونه ها می شود. عواملی مانند غلظت Si-OH در سطح سیلیکا، پراکنش یکنواخت نانوذرات در ماتریس پلیمری و سطح مشترک بین ذرات سیلیکا و پلیمر سیلیکون تأثیر زیادی بر خواص مکانیکی دارند. این ناحیه بین سطحی با کاهش اندازه ذرات به دلیل افزایش نسبت سطح ویژه به حجم نانوذرات افزایش می یابد. لذا با توجه به حضور چهار نانوذره در ماتریس لاستیکی در حالتی بسیار پیچیده، تحرک زنجیره های پلیمری محدود شده است و در نتیجه، آستانه پرکولاسیون شبکه نانوفیلرها موجب

می دهد [۳۱-۳۰]. مقادیر مدول الاستیک برای نمونه ها با اضافه کردن نانوپرکننده ها در جدول ۳ حاکی از افزایش مدول در نمونه های SR-SiO₂ و SR-SiO₂/A/M/SiC(2) می باشد. به طور کلی، سیلیکا اصلاح شده سطحی با ویژگی آبریزی برای پر کردن و تقویت SR استفاده می شود. در مطالعه حاضر، با توجه به مطالعات Kulik و همکاران [۳۲] از SiO₂ اصلاح نشده برای حذف اثرات شیمیایی مربوط به اصلاح سطح و بررسی تأثیر ذرات استفاده شد. اندازه ذرات پرکننده تأثیرات قابل توجهی بر استحکام کششی کامپوزیت دارد، زیرا ناحیه بین سطحی بین نانوفیلر و زنجیره های پلیمری را در بر می گیرد، از آن رو اگر پراکنش ذرات مناسب باشد انتقال تنش بین نانوذرات و ماتریس پلیمری را تسهیل می کند [۱۳].



شکل ۳. مقادیر سختی مقیاس Shore A در نمونه های نانوکامپوزیت و سیلیکون خالص



شکل ۴. استحکام کششی و مدول (a)؛ منحنی تنش- ازدیاد طول در نقطه شکست (b) در نمونه های نانوکامپوزیت و سیلیکون خالص

زمان شکست در کامپوزیتهای حاوی ۶ phr و ۴ از ماده SiC بیان نمود که تبیین آن نیاز به تحلیل میکروسکوپی دارد.

۳-۲- تحلیل نتایج مقاومت الکتریکی

خواص دی الکتریک اصولاً تحت تأثیر خواص فیزیکی ماده قرار دارد [۳۳]. بدیهی است که مدول و سختی بالاتر نانوکامپوزیت ها علت مقاومت بالاتر و هدایت الکتریکی کمتر در کل نمونه ها است. جدول ۴ مقاومت سطحی و مقاومت حجمی سیلیکون خالص و نانوکامپوزیت های سیلیکون را بر نشان می دهد. مشاهده می شود که مقاومت سطحی نمونه های SR-SiO₂ و SiO₂ نسبت به سیلیکون را بر مقداری افزایش نشان می دهند، در حالی که مقاومت حجمی تغییر قابل توجهی ندارد. همچنین در نانوکامپوزیت SR-SiO₂/A/M/SiC(2) مقاومت سطحی و مقاومت حجمی نسبت به نمونه را بر افزایش نشان می دهند. افزایش مقاومت سطحی نانوکامپوزیت ها را می توان به حضور نانوذرات نسبت داد. در نانوکامپوزیتهای مذکور با توجه به پراکندگی همگن نانو سیلیکا و دیگر ذرات در سطح ماتریس پلیمری، فضای بین زنجیره های پلیمری پر می شود، در نتیجه مانعی در برابر ولتاژ اعمالی محسوب شده و بنابراین باعث بهبود مقاومت سطحی می گردد. [۲۹].

براساس جدول ۴، نانوکامپوزیت های حاوی نانو ذره SiC با محتوای ۲، ۴ و ۶ phr مقاومت حجمی یک مرتبه بزرگتر از مقاومت حجمی پلیمر SR نشان دادند. در نانوکامپوزیت های پلیمری، برهمکنش نانوذره-پلیمر در تعیین عملکرد آنها بسیار

تقویت مکانیکی سیلیکون را بر شده است و سختی SR نسبت به سایر ترکیبات حاوی نانوپرکننده کمتر می باشد (شکل ۳).

شکل ۴ استحکام کششی و مدول SR و نانوکامپوزیت های SR را نشان می دهد. همانطور که می توان دید با ترکیب SiO₂ یا Al₂O₃ یا MgO مشاهده می شود که استحکام کششی و مدول SR به طور مداوم افزایش می یابد. همچنین قابل توجه است که افزودن SiC، استحکام کششی را کاهش داد که احتمالاً به دلیل ناهمگنی سیستم می باشد. از سوی دیگر، انعطاف پذیری، که در رفتار ازدیاد طول در هنگام شکست منعکس شده است (شکل ۴b) پیچیده تر است. شکل ۴b رفتار تنش- ازدیاد طول در نقطه شکست نمونه های SR شاهد و نانوکامپوزیت های SR را نشان می دهد. واضح است که ازدیاد طول در هنگام شکست با افزودن نانوذرات Al₂O₃، SiO₂ و MgO به SR افزایش یافته، در حالی که افزودن SiC ازدیاد طول در هنگام شکست (انعطاف پذیری) را بخصوص در مقدار بالا (۶ phr و ۴) کاهش داده است، که احتمالاً در نتیجه کلوخه شدن ذرات است. به نظر می رسد که حضور مقادیر بالای SiC برهمکنش سطحی بین سیلیکون و نانو ذرات شده است [۱۰]. از آنجایی که بسیاری از خواص مکانیکی در الاستومرها با یکدیگر رابطه ی عکس دارند و با بهبود یکی از خواص مکانیکی خاصیت دیگر کاهش می یابد، با افزایش مدول و تا حدودی استحکام کششی، میزان ازدیاد طول در شکست نانوکامپوزیت ها کاهش پیدا می کند. در این راستا، احتمال کلوخه شدن نانو ذرات SiC و بالتبع کاهش تحرک زنجیره های پلیمری را می توان به عنوان توجیهی برای کاهش ازدیاد طول در

جدول ۴. مقاومت سطحی و مقاومت حجمی نمونه ها

نمونه	مقاومت سطحی (Ω)	مقاومت حجمی ($\Omega.cm$)
SR	8.42×10^{14}	2.39×10^{14}
SR-SiO ₂	1.24×10^{15}	6.91×10^{14}
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(0)	2.24×10^{15}	9.22×10^{14}
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(2)	1.00×10^{15}	1.19×10^{15}
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(4)	1.50×10^{15}	3.03×10^{15}
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(6)	2.62×10^{15}	1.02×10^{15}

الکتریکی متناسب با معکوس (ϵ^{-1}) است، به این معنی که با مقدار بیشتر ϵ^{-1} ، مقدار ϵ^{-1} کمتر می شود. بنابراین، مقاومت اصولاً باید با افزایش در مقدار ϵ^{-1} افزایش یابد [۳۵]، که مطابق با داده های ارائه شده در جداول ۲ و ۴ است. وجود نانوذرات بیشتر و افزایش مقدار SiC باعث افزایش کسر فضای خالی در نانو کامپوزیت ها شده، به طوری که فشردگی کاهش و مقاومت الکتریکی افزایش می یابد.

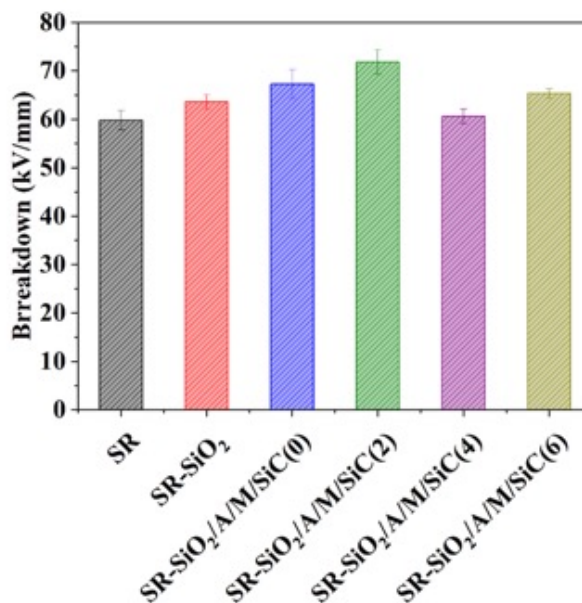
۳-۳- تحلیل نتایج استحکام شکست دی الکتریک

با اعمال میدان الکتریکی به یک نمونه دی الکتریک، جریان در ماتریس آن انتشار یافته، گرما تولید شده و دما افزایش می یابد. درجه حرارت بالا باعث تخریب پلیمر می شود و عملکرد عایق کاهش می یابد [۳۶]. چندین مکانیسم مانند تخریب حرارتی و فرسایش/الکتروشیمیایی برای شکست الکتریکی در مواد عایق جامد پیشنهاد شده است [۳۷]. نانوفیلرها می توانند بر استحکام شکست دی الکتریک از طریق مکانیسم پراکندگی تأثیر بگذارند.

تأثیرگذار است. به عبارت دیگر، با افزودن مقدار کمی نانوذره SiC، جذب حامل های بار در ماتریس سیلیکون افزایش یافته و مقاومت نانو کامپوزیت ها را افزایش می یابد [۲۲].

بر اساس جدول ۴، حضور نانوذرات MgO و Al₂O₃ مقاومت سطح را به $10^{15} \times 2/24$ اهم در نمونه SR-SiO₂/A/M/SiC(0) افزایش می دهد. افزایش مقاومت یا کاهش در رسانایی مربوط به نقص در سطح نانوذرات MgO در سطح مشترک پلیمر/نانوذره است. نانو ذرات MgO گونه هایی باردار با سطح ویژه بزرگ فراهم می کند، یعنی می تواند به طور فعال حامل های بار را جذب کند و تجمع بار را در نانو کامپوزیت پلیمری عایق کاهش دهد. در نتیجه هدایت کامپوزیت با ایجاد میدان الکتریکی بالا، به میزان قابل توجهی کاهش می یابد [۱۹].

به طور کلی، مقاومت الکتریکی (جدول ۴) به تخلخل (ϵ^{-1}) نانو کامپوزیت (جدول ۲) بستگی دارد. برخی روابط نیمه تئوری برای محاسبه مقاومت الکتریکی وجود دارد. که طبق آن، مقاومت



شکل ۵. استحکام دی الکتریک نمونه های نانو کامپوزیت مورد مطالعه

که محتوای نانو SiC افزایش یافت، نانوذرات روی یکدیگر قرار گرفته، پرکولاسیون تسریع گردید و باعث کاهش استحکام میدان شکست نانوکامپوزیت شد (نمونه های (SR-SiO₂/A/M/ SiC(4) و SR/SiO₂-SiC(6) A/M/SiC) [۳۶].

۳-۴- تحلیل نتایج جریان پلاریزاسیون

در اتم ها و مولکولهای مواد عایق، مجموع بارها صفر است، در اثر میدان الکتریکی خارجی، بارهای مثبت و منفی اتم ها یا مولکول ها، در جای خود یک حرکت الاستیکی انجام داده و با از بین رفتن میدان دوباره به حالت قبلی خود بازمی گردند. حرکت الاستیکی بارهای الکتریکی غیر آزاد در ماده عایق، بر اثر میدان الکتریکی را، پولاریزاسیون یا قطبی شدن می نامند.

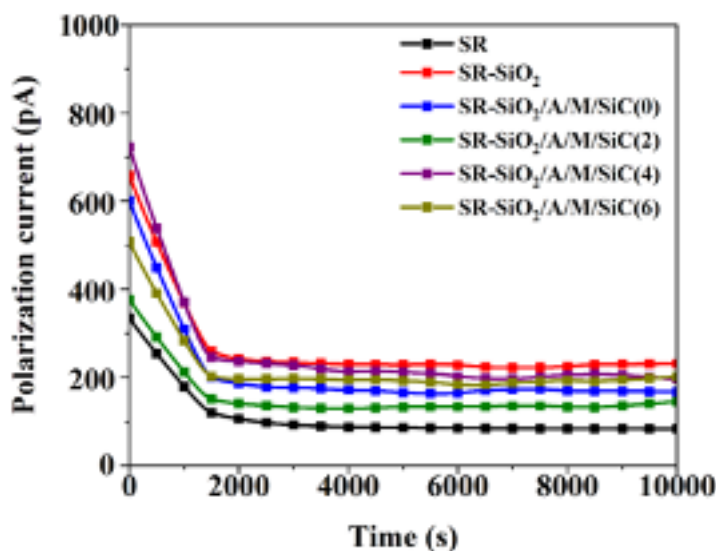
در شکل ۶ اندازه گیری جریان پلاریزاسیون در نمونه سیلیکونی خالص و نمونه های نانو کامپوزیت نشان داده شده است. مراحل با اعمال ولتاژ جریان مستقیم به دی الکتریک مورد نظر برای مدت ۱۰۰۰۰ ثانیه در دمای ۲۰ درجه سانتی گراد و ولتاژ ۲ کیلو ولت انجام شد. در طی این مدت جریان پلاریزاسیون با توجه به نوع دی الکتریک و میزان هدایت آن ایجاد می شود. در طی مدت پولاریزاسیون، بارهای الکتریکی جابه جا شده که به معنای جریان الکتریسیته است و بوسیله آمپر متر نمایش داده می شود. بعد از انجام عمل پولاریزاسیون، جریان الکتریکی کم شده ولی به صفر نمی رسد، زیرا عایق کامل وجود ندارد.

با توجه به نمودار، نمونه (SR-SiO₂/A/M/SiC(2) (که دارای ۵ درصد وزنی SiO₂، ۱ درصد وزنی Al₂O₃، ۱ درصد وزنی MgO و ۲ درصد وزنی SiC است)، حداقل جریان پلاریزاسیون

نانوذرات انرژی را از الکترون ها یا حامل های بار دریافت می کنند تا تحرک الکترونها را کاهش دهند و انرژی حامل های بار به طور یکنواخت تر در پلیمر پراکنده شود که از آسیب مواد با تشدید استحکام مواد دی الکتریک جلوگیری می کند [۳۷-۳۹].

شکل ۵ استحکام میدان شکست نانوکامپوزیت های SR را نشان می دهد، به طوری که استحکام شکست SR با افزودن نانوذرات، SiC، MgO، Al₂O₃ و SiO₂ افزایش می یابد. در واقع نانوذرات با افزایش تخلخل (جدول ۲) تله های بیشتری در سیستم برای گرفتن حامل های بار ایجاد می کنند و ضربه آزاد آنها را کاهش می دهد. علاوه بر این، نانوذرات حرکت زنجیره های SR را محدود می کنند که باعث افزایش استحکام شکست دی الکتریک نانوکامپوزیت ها می شود [۳۶].

مطالعات نشان می دهد که نانوپرکننده هایی مانند SiO₂ به عنوان یک عایق عمل می کنند و سازگاری و چسبندگی را در نانوکامپوزیت بهبود می بخشد [۴۰]. هنگامی که تنش الکتریکی اعمال می شود، پلیمرهایی که دارای SiO₂ یا SiC هستند، به دلیل کاهش عمق فرسایش، در مقایسه با پلیمرهای بدون پرکننده، مقاومت الکتریکی بیشتری در برابر تخلیه جزئی نشان می دهد [۴۱]. همچنین مراجع نشان می دهند که وجود Al₂O₃ نه تنها از ایجاد درخت الکتریکی جلوگیری می کند، بلکه انتشار آن را نیز کاهش می دهد؛ بنابراین نانو Al₂O₃ می تواند شکست نانوکامپوزیت را به تأخیر انداخته و استحکام شکست دی الکتریک را افزایش دهد [۴۲]. با توجه به شکل ۵ تأثیر نانوذرات در نانوکامپوزیت (SR-SiO₂/A/M/SiC(2) آشکار است و مقدار ماکزیمم استحکام شکست را نشان می دهد. اما هنگامی



شکل ۶. جریان پلاریزاسیون در نمونه SR خالص و نانوکامپوزیت های SR در ولتاژ ۲ kV و دمای ۲۰ °C

را کاهش دهد.

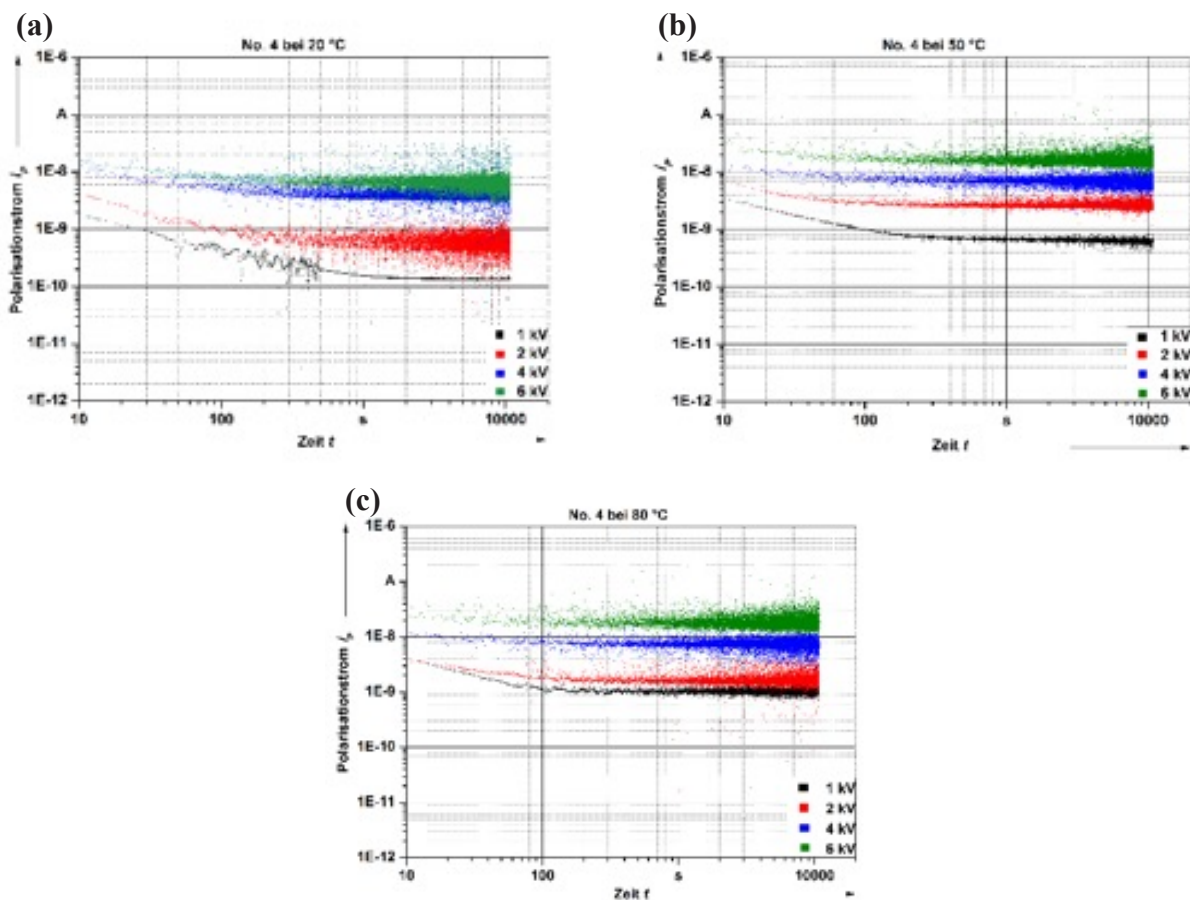
شکل ۷ جریان پلاریزاسیون نانوکامپوزیت ها را در دماهای ۸۰، ۵۰ و ۲۰ درجه سانتیگراد نشان می دهد. به طور کلی، در دمای بالاتر زمان کمتری برای رسیدن به حالت پایدار جریان نیاز است، زیرا در دمای بالاتر یک پالس بالای جریان اولیه را می توان مشاهده کرد که بیانگر جمعیت معنی داری از الکترون های اولیه در سیستم است و تحت عنوان مکانیسم ریچاردسون-شاتکی توضیح داده می شود [۴۵]. بنابراین در دماهای بالاتر سریعتر می توان به سطح جریان پایدار در نانوکامپوزیت ها دست یافت.

۳-۵- آنالیز گرمایی دینامیکی مکانیکی

تجزیه و تحلیل دینامیکی مکانیکی (DMA) پاسخ یک نمونه معین به یک تغییر شکل نوسانی را به عنوان تابعی از دما مشخص می کند. نتایج DMA سه متغیر را توضیح می دهد: (۱) مدول ذخیره (E) (۲) مدول اتلاف (E) و (۳) فاکتور اتلاف ($\tan \delta$) که برای تعیین میزان بهبود انتقالات مولکولی مانند انتقال شیشه ای (T_g) مفید هستند. ظرفیت میرایی پلیمر با شدت و وسعت پیک فاکتور اتلاف ($\tan \delta$) نشان داده می شود [۴۶].

را از خود نشان می دهد که نشان دهنده مقاومت بالاتر و هدایت پایین نمونه نانوکامپوزیت در مقایسه با دیگر نمونه ها است. این مطالعه نشان می دهد که ۲ درصد وزنی SiC مقاومت نانوکامپوزیت را افزایش می دهد. سطح واکنش پذیر SiO_2 با زنجیره های SR در تعامل است، به طوری که چسبندگی بین سطحی افزایش می یابد. نانوفیلرهای SiO_2 به علت هدایت کمتر دارای خواص دی الکتریک در نمونه های نانوکامپوزیت می باشد [۴۳]. همچنین با افزایش نانوذرات، تخلخل نانوکامپوزیت بیشتر شده که منجر به افزایش مقاومت و کاهش جریان در نانوکامپوزیت می شود (جدول ۲).

در مقایسه با سایر نمونه ها، نانوکامپوزیت $\text{SiC}(6)\text{SR}-\text{SiO}_2/A/M$ دارای بالاترین جریان پلاریزاسیون است. کلوخه شدن نانو ذرات در این نانوکامپوزیت باعث می شود حامل های بار بیشتری ایجاد شود و جریان پلاریزاسیون بالاتری به دست آید [۴۴]. علاوه بر این، جریان پلاریزاسیون بالاتر نمونه نانوکامپوزیت SR- $\text{SiO}_2/A/M/\text{SiC}(2)$ نسبت به SR خالص باعث می شود جریان بار در نانوکامپوزیت تسهیل شده و تجمع بار در مواد عایق



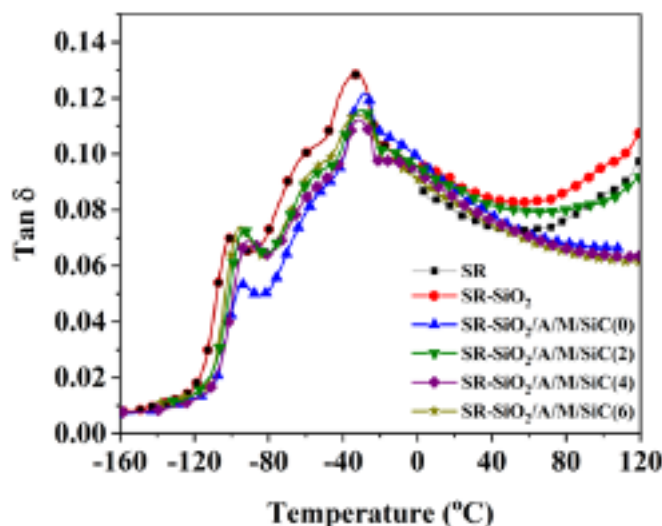
شکل ۷. اندازه گیری جریان پلاریزاسیون در ولتاژهای متفاوت و دماهای (۲۰ °C)، (۵۰ °C) و (۸۰ °C)

جدول ۵. خواص دینامیکی مکانیکی نمونه ها در فرکانس ۱ Hz

نمونه	T_g (°C)	$\tan \delta_1$	T_m (°C)	$\tan \delta_2$
SR	-143.2	0.0712	-33.2	0.1424
SR-SiO ₂	-102.0	0.0701	-31.2	0.1403
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(0)	-94.9	0.0536	-29.4	0.1290
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(2)	-95.0	0.0725	-30.4	0.1231
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(4)	-92.3	0.0692	-30.5	0.1183
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(6)	-96.3	0.0742	-28.9	0.1225

T_g : دمای انتقال شیشه ای؛ $\tan \delta_1$: $\tan \delta$ در دمای T_g

T_m : دمای ذوب کریستالها؛ $\tan \delta_2$: $\tan \delta$ در دمای T_m



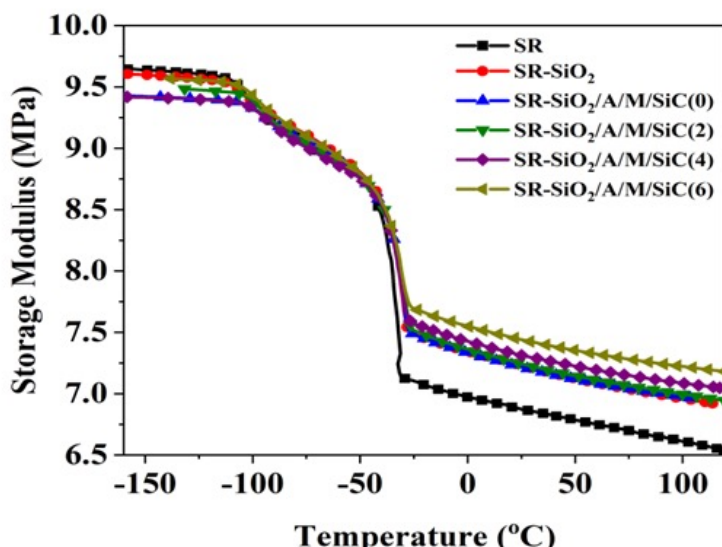
شکل ۸. تغییرات $\tan \delta$ به عنوان تابعی از دما در نمونه های مطالعه شده

به طور کلی، بخش های پلیمری با نانوذرات برهمکنش می کنند که منجر به افزایش T_g می شود. تغییرات $\tan \delta$ در نانوکامپوزیت ها به استثنای نمونه SR-SiO₂/A/M/SiC(6) مشابه تغییرات SR است. با افزایش محتوای نانوفیلر SiC، ارتفاع پیک $\tan \delta$ کوتاه تر می شود، که نشان دهنده محدودیت در میرایی نانوکامپوزیت ها است. افزایش T_g و کاهش ارتفاع پیک $\tan \delta$ نتیجه افزوده شدن نانوذرات است که خود نشان از افزایش برهمکنش پلیمر-نانوذره است. این برهمکنش ها تحرک بخش های زنجیره های پلیمری را محدود می کند. بنابراین، هر گونه کاهش در $\tan \delta$ کاهش تعداد زنجیرهای متحرک را در محدوده انتقال شیشه ای نشان می دهد. بدیهی است که هرچه پیک $\tan \delta$ کوتاه تر باشد، راندمان تقویت کنندگی فیلر مربوطه بیشتر خواهد بود [۴۶].

کل منحنی ها (شکل ۹) سه ناحیه مجزا را نشان می دهد: یک بخش شیشه ای با مدول بالا که در آن تحرک بخش های زنجیره بسیار محدود است، با افزایش دما منطقه انتقال مشاهده می شود

آزمایش دینامیکی مکانیکی نانوکامپوزیت های مورد مطالعه در جدول ۵ و شکل های ۸، ۹ و ۱۰ ارائه شده است. با افزایش دما حجم های آزاد افزایش یافته، سپس زنجیره های ناحیه آمورف شروع به سازماندهی حرکات وسیع می کنند و دمای انتقال شیشه ای (T_g) ظاهر می شود. با ادامه گرمایش، T_m مطابق با ذوب کریستال ها آشکار می شود [۲۸، ۴۷].

برای تعیین T_g نانوکامپوزیت ها، از پیک منحنی های $\tan \delta$ استفاده شد. در کلیه نمونه های نانوکامپوزیت، دمای انتقال شیشه ای در دماهای بالاتر در مقایسه با SR شاهد رخ می دهد. علاوه بر این، ارتفاع $\tan \delta$ برای نانوکامپوزیت ها کاهش یافته است (شکل ۸ و جدول ۵). در این مطالعه T_m الاستومر خالص $33/2^\circ\text{C}$ بدست آمد، در حالی که افزودن ۵ phr SiO₂ مقدار T_m را نزدیک به 31°C نشان داد. با اضافه کردن ۶ phr SiC، مقدار T_m به $28/9^\circ\text{C}$ افزایش یافت، که به معنای محدودیت بیشتر زنجیره های پلیمری سیلیکون است.



شکل ۹. منحنی مدول ذخیره نمونه های نانوکامپوزیت مورد مطالعه به عنوان تابعی از دما

نانو سیلیکا و بقیه پرکننده ها رخ می دهد و برهمکنش فیبر-فیبر را کاهش می دهد که دلیلی بر کاهش استحکام و مدول نمونه است. مانند آنالیز مکانیکی، نانوکامپوزیت پر شده با سیلیکا مدول ذخیره کمی بالاتر از نمونه خالص نشان می دهد (شکل ۹ و ۱۰). افزایش مدول الاستیسیته و کاهش فاکتور اتلاف نشان دهنده تقویت سیلیکون است، که با تحقیقات قبلی بر اساس تکنیک های مختلف اندازه گیری مطابقت دارد [۳۲].

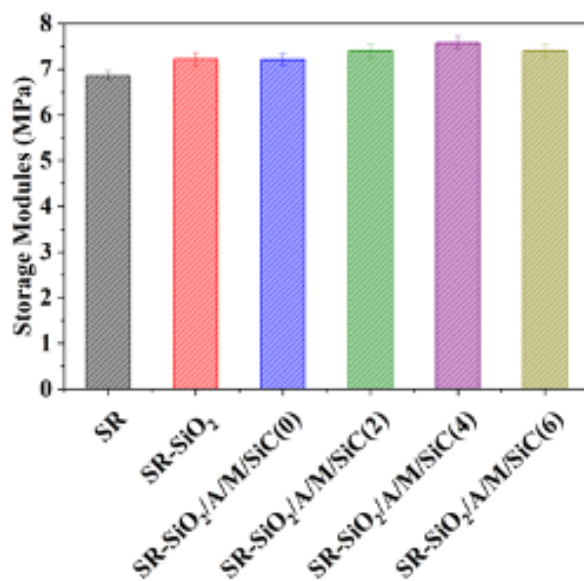
۳-۶- تحلیل نتایج گرما وزن سنجی

پایداری حرارتی نانوکامپوزیت های SR با استفاده از آنالیز گرما وزن سنجی اندازه گیری شد و شکل ۱۱ تأثیر ساختار حضور نانو ذرات را بر سیلیکون رابر نشان می دهد. همانطور که مشاهده

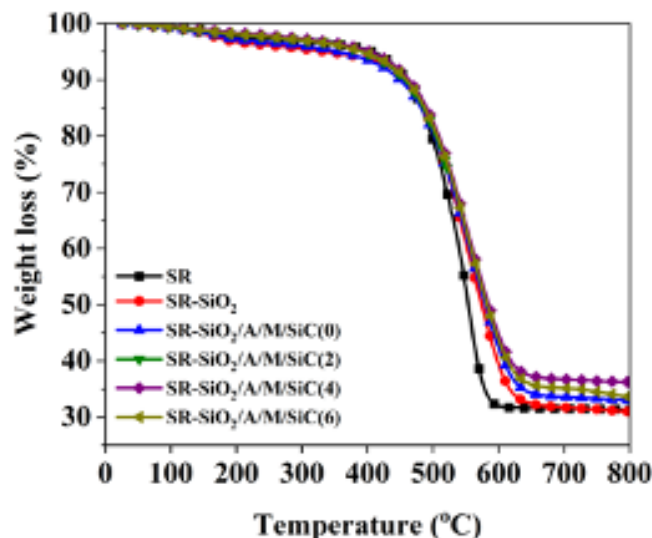
که در آن یک افت قابل توجه مدول ذخیره رخ می دهد، و ناحیه لاستیکی که در آن مقدار مدول با افزایش دما تقریباً بدون تغییر باقی می ماند [۴۸].

در دمای اتاق مقدار مدول ذخیره در کلیه نمونه های نانوکامپوزیت افزایش می یابد (شکل ۱۰). با توجه به شکل ۹ و ۱۰ می توان دریافت که مقدار مدول ذخیره نانوکامپوزیت های لاستیک سیلیکونی (نمونه های SR-SiO₂ و SR-SiO₂/A/M/SiC(2)) توسط نانوذرات SiO₂ و SiC بهبود یافته و به حداکثر خود در نمونه SR-SiO₂/A/M/SiC(4) می رسد.

در نمونه SR-SiO₂/A/M/SiC(6)، با توجه به وجود نانوذرات Al₂O₃، MgO و محتوای بالای SiC، رقابتی بین



شکل ۱۰. مدول ذخیره در نمونه های نانوکامپوزیت مورد مطالعه در دمای ۲۵ °C



شکل ۱۱. منحنی گرما وزن سنجی در نمونه های مطالعه شده

جدول ۶. ویژگی های تخریب نمونه ها به عنوان تابعی از زمان

نمونه	T _d max °C	T _d 50% °C	T _d 10% °C	ذغال باقیمانده در دمای 809°C (%)
SR	448	552	458	31.33
SR-SiO ₂	555	573	458	30.90
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(0)	557	579	449	33.13
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(2)	556	576	455	36.50
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(4)	558	584	462	36.21
SR-SiO ₂ /A/M/SiC(6)	562	582	459	33.47

T_d : دمای تخریب

مقاومت در برابر تنش های حرارتی [۱۶] و نانوذره SiC به دلیل پایداری گرمایی بالا [۲۰، ۲۱] پایداری گرمایی نانوکامپوزیت ها را افزایش داده است. بعلاوه، به دلیل تولید شبکه اتصالات عرضی (پروکولسیون) از ذرات نانو، محدودیت حرکت زنجیره های پلیمری اتفاق می افتد و در نهایت T_d max و T_d ۵۰٪ به دماهای بالاتر جابجا می شود.

با توجه به روند مشاهده شده تفاوت زیادی در منحنی ها مشاهده می گردد که برای تبیین بهتر، منحنی DTG برای نمونه های نانوکامپوزیت و سیلیکون رابر در شکل ۱۲ رسم گردید.

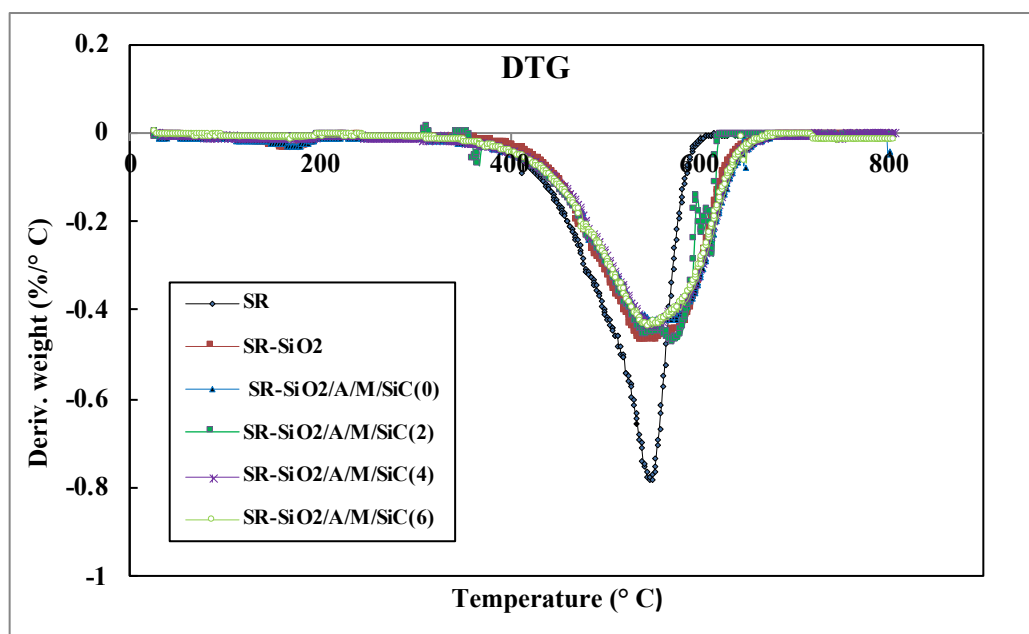
با توجه به شکل ۱۲ مشخص است که شدت پیک ها متناسب با شیب تغییرات وزنی در نمودار TGA است. پیک سیلیکون رابر خالص نسبت به نمونه های نانوکامپوزیت باریکتر و شدیدتر است که نشان دهنده تغییرات وزنی بالاتر و شیب بیشتر می باشد. همانگونه که در شکل DTG مشاهده می گردد منحنی نانوکامپوزیت (SR-) SiO₂/A/M/SiC(6) باید بالاتر باشد ولی با توجه به ایجاد کلوخه ها و تجمعاتی که در نمونه های نانوکامپوزیت SR-SiO₂/

می شود، نانوکامپوزیت ها بیشترین پایداری حرارتی را در مقایسه با سیلیکون رابر خالص نشان می دهند.

فرسایش مواد پلیمری با تخریب حرارتی صورت می گیرد زیرا دماهای بالا از قوس نوار خشک ناشی می شود. رفتار تخریب گرمایی تحت دمای بالا می تواند ارتباط نزدیکی با مقاومت در برابر فرسایش داشته باشد [۴۹].

نتایج مطالعات TGA در شکل ۱۱ و جدول ۶ نشان می دهد که بالاترین میزان تخریب با توجه به حضور SiO₂، Al₂O₃، SiC و MgO در دماهای بالاتر در نمونه های SR-SiO₂ تا SR-SiO₂/A/M/SiC(6) انجام می شود.

دمای تخریب مربوط به ۵۰٪ نانوکامپوزیت ها با توجه به حضور ذرات در همه ی نمونه های نانوکامپوزیت به سمت دمای بالاتر تغییر می کند (جدول ۶). دمای تخریب بیشینه (T_d max) سیلیکون رابر ۴۴۸ °C است که کمترین مقدار در بین کل نمونه های مورد بررسی است. دمای تخریب بیشینه در نانوکامپوزیت ها به سمت دماهای بالاتر جابه جا شده است. نانوذره SiO₂ به علت



شکل ۱۲. منحنی گرما وزن سنجی تفاضلی در نمونه های مطالعه شده

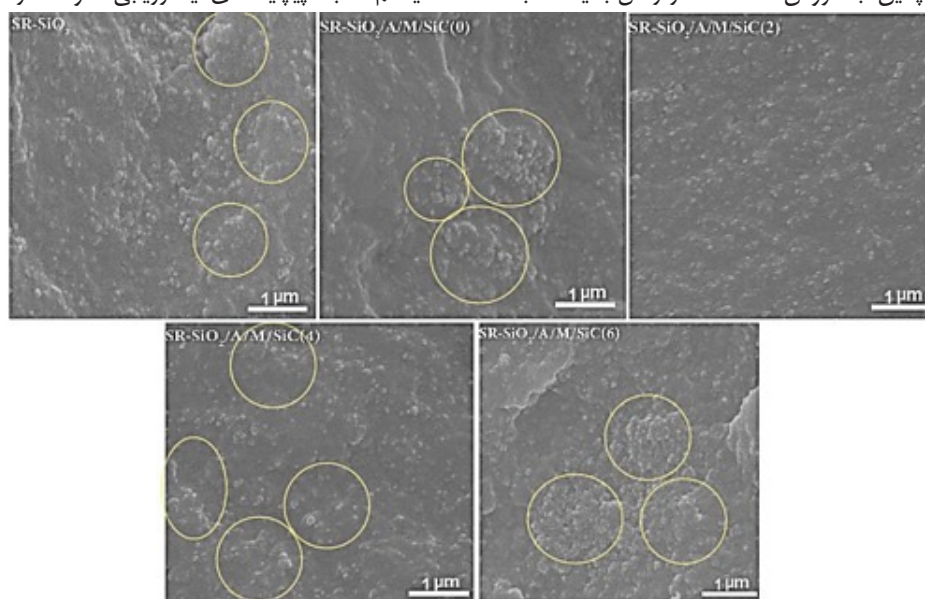
دلیل مقاومت حرارتی زیاد SiC بیشتر شد [۵۰]. بنابراین پایداری گرمایی بیشتر نانو کامپوزیت ها همراه با افزایش میزان ذغال باقیمانده می باشد (نمونه های SR-SiO₂/A/M/SiC(2)، SR-SiO₂/A/M/SiC(4)، SR-SiO₂/A/M/SiC(4) و SR-SiO₂/A/M/SiC(6)).

۳-۷- آنالیز میکروسکوپ الکترونی روبشی

میکروگراف های میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) نمونه ها به عنوان معیاری برای پراکندگی و توزیع نانوذرات در چنین سیستم نسبتا پیچیده ای یا ارزیابی نانو ساختار کامپوزیت های

SR-SiO₂/A/M/SiC(6) وجود دارد و در میکروگراف های SEM نیز به آن اشاره گردیده است مانع از تغییرات در نمودارهای گرما وزن سنجی SR-SiO₂/A/M/SiC(4) و SR-SiO₂/A/M/SiC(6) گردیده است.

جدول ۶ هم چنین نشان می دهد که مقدار ذغال باقیمانده در نمونه SR-SiO₂ کاهش یافته است. نانو ذره SiO₂ یک فیلر رسانای حرارتی است، بنابراین احتراق نانو کامپوزیت را افزایش داده و منجر به ذغال باقیمانده کمتر در نمونه می شود. وقتی Al₂O₃ و MgO اضافه شد، ذغال باقیمانده در نمونه SR-SiO₂/A/M/SiC(0) افزایش یافت. همچنین، با افزودن SiC، مقدار زغال باقیمانده به



شکل ۱۳. میکرو گراف های سطح شکست در نمونه های نانو کامپوزیت.

ماتریس SR منجر به افزایش طول در نقطه شکست شد. اما با افزودن مقادیر ۴ و ۶ درصد وزنی SiC، برهمکنش ضعیف بین سیلیکون رابر و SiC مشاهده شد، و در اثر کلوخه شدن نانوذرات SiC، تحرک زنجیره پلیمری محدود و ازدیاد طول در نقطه شکست کاهش یافت. مقاومت سطحی و مقاومت حجمی نانوکامپوزیت های سیلیکونی با حضور نانو ذرات SiO_2 ، Al_2O_3 ، MgO و SiC یک مرتبه بهبود نشان دادند. بالاترین مقاومت حجمی و مقاومت سطحی همزمان مشاهده شده مربوط نمونه‌ی نانوکامپوزیت SR-SiC(4)/A/M/SiC(4) بود. ترکیب نانوذرات SiC(2)/A/M/SiC(2) مقاومت نانوکامپوزیت سیلیکونی را به دلیل چسبندگی زیاد بین سطحی افزایش می دهد. سطح مشترک نانوذره-ماتریس که هدایت بیشتری نسبت به دیگر بخش‌های ماتریس دارد تجمع بار را کاهش می‌دهد و راه‌های هدایت بیشتری برای افزایش تحرک حامل های بار فراهم می‌کند، بارهای بیشتری دفع می کند و نهایتاً میزان شکست دی الکتریک را افزایش می دهد. حداکثر دمای تجزیه نانوکامپوزیت های سیلیکونی نسبت به نمونه خام افزایش یافت. در نانوکامپوزیت های حاوی ۵ phr نانو ذره SiO_2 ، دمای تخریب بیشینه را به طور موثری بهبود بخشیده شد. T_g نانوکامپوزیت ها نسبت به SR افزایش یافت. بعلاوه، با افزایش نانوذرات، ارتفاع پیک $\tan\delta$ در نانوکامپوزیت ها کاهش یافت، که به معنای محدودیت بیشتر زنجیره های پلیمری ماتریس سیلیکونی است. خواص مورد بررسی به دلیل تداخل احتمالی بین نانوذرات و کاهش فصل مشترک بین نانوذرات و ماتریس سیلیکون رزین بهینه نبود. با این حال، رفتار پلازیماسیون چنین سیستم هایی به منظور تجاری سازی محصولات در آینده نزدیک باید با دقت مورد توجه قرار گیرد.

در نظر گرفته می شود (شکل ۱۳). بدیهی است که به جز نانوکامپوزیت SR حاوی ۲ phr نانو ذره SiC نمونه SR-SiC(2)/A/M/SiC(2) بقیه نمونه ها حاوی کلوخه هایی هستند. آنالیز میکروگراف های SEM نشان داد که میانگین اندازه توده ها در SiO_2 ، Al_2O_3 ، MgO ، $SiC(0)$ SR-SiC(4) و $SiC(6)$ SR برابر با 0.172 ، 0.174 ، 0.168 و 0.176 است، اگرچه در نتیجه پیچیدگی سیستم، منطقی نیست که به دنبال یک ارتباط دقیق یا نیمه دقیق بین اندازه کلوخه ها و خواص نانوکامپوزیت باشیم. همچنین باید اضافه کنیم که تعداد کلوخه ها در سیستم های حاوی SiC کمی بیشتر بود، در حالی که اندازه کلوخه ها در غیاب SiC بزرگتر بود. این ریزساختارها تأثیر مستقیم روی خواص الکتریکی نانوکامپوزیت ها دارند [۲۱]. به طور کلی، پراکندگی خوب نانوذرات در ماتریس پلیمری منجر به افزایش در شکاف انرژی بین لایه ظرفیت می شود و نوار رسانا و مقاومت الکتریکی را تقویت می کند. برهم کنش پرکننده ها با ماتریس پلیمری باعث ایجاد پیوند شیمیایی پایدارتر می شود. با این حال، سطح فعال نانو سیلیکا و برهمکنش آن با زنجیره های SR منجر به تجمع آشکاری می شود [۵۱]. چون SiC تمایل به تجمع دارد، جز در بارگذاری ۲ phr، نقش آن به عنوان یک عامل تقویت کننده باید تجدید نظر شود. نانوکریستال های SiC به علت برهمکنش های واندوالس و برهمکنش بین سطحی محدود آنها با ماتریس های پلیمری تمایل زیادی به کلوخه شدن دارند [۲۲، ۲۰].

۴- نتیجه گیری

مجموعه ای از نانوکامپوزیت های SR حاوی نانوذرات SiO_2 ، Al_2O_3 ، MgO و SiC به عنوان نانوکامپوزیت های عایق بالقوه تهیه شدند. خواص مکانیکی SR توسط نانوذرات SiC و SiO_2 بهبود یافت که این افزایش خواص به برهمکنش بهتر بین پلیمر PDMS و ذرات SiO_2 ، Al_2O_3 ، MgO مرتبط است. نانو ذره SiC به دلیل تمایل به کلوخه شدن اثر قابل توجهی روی استحکام کششی ندارد. مدول ذخیره نانوکامپوزیت های سیلیکونی با نانو ذرات SiO_2 ، Al_2O_3 ، MgO و SiC افزایش یافت و نمونه SR-SiC(4)/A/M/SiC(4) بالاترین مدول ذخیره را نشان داد. افزوده شدن نانوفیلرها منجر به افزایش سختی نانوکامپوزیت های SR گردید. علاوه بر این، نانوفیلرها حرکت زنجیره های پلیمری را محدود کرده و مدول ذخیره و سختی را افزایش دادند. افزودن MgO ، Al_2O_3 ، SiO_2 به SR به دلیل پراکندگی نسبتاً مناسب نانوفیلرها و برهمکنش بین نانوفیلرها و

مراجع

- H. I. Uckol, B. Karaca, S. Ilhan, DC and AC Electric Field Analysis and Experimental Verification of a Silicone Rubber Insulator. *Electrical Engineering*(2020), pp. 1-12.
- S. Alam, Y. V Serdyuk, S. M. Gubanski, Temperature and Field Induced Variations of Electric Conductivities of HTV Silicone Rubbers Derived from Measured Currents and Surface Potential Decay Characteristics. *Energies*(2020), vol. 13, p. 2982.
- K. Mekala, S. Chandrasekar, R. Samson Ravindran, Investigations of Accelerated Aged Polymeric Insulators Using Partial Discharge Signal Measurement And Analysis. *Journal of Electrical Engineering and Technology*(2015), vol. 10, pp. 299-307.
- A. Nekahi, S.G. McMeekin, M. Farzaneh, Measurement of Surface Resistance of Silicone Rubber Sheets under Polluted and Dry Band Conditions. *Electrical Engineering* (2018), vol. 100, pp. 1729-1738.
- S. Gupta, P. C. Ramamurthy, G. Madras, Future scope of silicone polymer based functionalized nanocomposites for device packaging: a mini review. *Journal of Chemical Engineering & Process Technology* (2015), vol. 6, p. 213.
- Z.L. Li, B.X. Du, Z.R. Yang, J. Li, Effects of Crystal Morphology on Space Charge Transportation and Dissipation of SiC/Silicone Rubber Composites. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* (2017), vol. 24, pp. 2616-2625.
- M. Jouyandeh, O. Moini Jazani, A. H. Navarchian, M. Shabanian, H. Vahabi, M. R. Saeb, Surface engineering of nanoparticles with macromolecules for epoxy curing: Development of super-reactive nitrogen-rich nanosilica through surface chemistry manipulation. *Applied Surface Science* (2018), vol. 447, pp. 152-164.
- F. Tikhani, M. Jouyandeh, Seyed H. Jafari, S. Chabokrow, M. Ghahari, K. Gharanjig, F. Klein, N. Hampp, M. R. Ganjali, K. Formela, Cure Index demonstrates curing of epoxy composites containing silica nanoparticles of variable morphology and porosity. *Progress in Organic Coatings*(2019), vol. 135, pp. 176-184.
- S. Ghiyasi, M. Ganjaee Sari, M. Shabanian, M. Hajibeygi, P. Zarrintaj, M Rallini, L. Torre, D. Puglia, H. Vahabi, M. Jouyandeh, Hyperbranched poly (ethyleneimine) physically attached to silica nanoparticles to facilitate curing of epoxy nanocomposite coatings. *Progress in Organic Coatings* (2018), vol. 120, pp. 100-109.
- E. Bakhshandeh, A. Jannesari, Z. Ranjbar, S. Sobhani, M. R. Saeb, Anti-corrosion hybrid coatings based on epoxy-silica nano-composites: toward relationship between the morphology and EIS data. *Progress in Organic Coatings* (2014), vol. 77, pp. 1169-1183.
- Z. Karami, O. Moini Jazani, A. H. Navarchian M. R. Saeb, State of cure in silicone/clay nanocomposite coatings: the puzzle and the solution. *Progress in Organic Coatings* (2018), vol. 125, pp. 222-233.
- Z. Karami, O. Moini Jazani, A.H. Navarchian, M. Karrabi, H. Vahabi, M.R. Saeb, Well-cured silicone/halloysite nanotubes nanocomposite coatings. *Progress in Organic Coatings* (2019), vol. 129, pp. 357-365.
- J. Vartika, M. Srividhya, D. Mayank, Effect of Functionalization on Dispersion of Poss-Silicone Rubber Nanocomposites. *J. Appl. Polym. Sci* (2013), vol. 130, pp. 92-96.
- S. Ansoorge, K. Papailiou, Properties of Silicone Rubber under High Loadings of Alumina Trihydrate Filler. *Journal of Elastomers & Plastics* (2016), vol. 48, pp. 354-382.
- G. Momen, M. Farzaneh, Survey of Micro/Nano Filler Use to Improve Silicone Rubber for Outdoor Insulators. *Rev. Adv. Mater. Sci* (20110), vol. 27, pp. 1-13.
- A. Khattak, M. Iqbal, M. Amin, Aging Analysis of High Voltage Silicone Rubber/ Silica Nanocomposites Under Accelerated Weathering Conditions. *Science and Engineering of Composite Materials* (2017), vol. 24, pp. 679-689.
- H. Li, Z. Yin, L. Deng, S. Wang, Z. Fu, Y. Ma, Effect of SiO₂/Al₂O₃ ratio on the structure and electrical properties of MgO-Al₂O₃-SiO₂ glass-ceramics doped with TiO₂. *Materials Chemistry and Physics* (2020), vol. 256, p. 123653.
- M. Ma, L. Xu, L. Qiao, S. Chen, Y. Shi, H. He, X. Wang, Nanofibrillated Cellulose/MgO@rGO composite films with highly anisotropic thermal conductivity and electrical insulation. *Chemical Engineering Journal* (2020), vol. 392, p. 123714.
- A. M. Pourrahimi, L. K.H. Pallon, D. Liu, T. A. Hoang, S. Gubanski, M. S. Hedenqvist, R. T. Olsson, U. Gedde, Polyethylene Nanocomposites for the Next Generation of Ultra-Low Transmission-Loss HVDC Cables: Insulations Containing Moisture-Resistant Mgo Nanoparticles. *ACS applied materials & interfaces*(2016), vol. 8, pp. 14824-14835.
- I. Saini, A. Sharma, R. Dhiman, S. Aggarwal, S. Ram, P. K. Sharma, Grafted SiC Nanocrystals for Enhanced Optical, Electrical and Mechanical Properties of Polyvinyl Alcohol. *Journal of Alloys and Compounds* (2017), vol. 714, pp. 172-180.
- Y.Wang, C. Wang, K. Xiao, Investigation of the Electrical Properties of XLPE/SiC Nanocomposites. *Polymer Testing* (2016), vol. 50, pp. 145-151.
- N. Shang, Q.Chen, X. Wei, Preparation and Dielectric Properties of SiC/LSR Nanocomposites for Insulation of High Voltage Direct Current Cable Accessories. *Materials* (2018), vol. 11, p. 403.
- P. Fan, Z. Sun, Y. Wang, H. Chang, P. Zhang, S. Yao, C. Lu, W. Rao, J. Liu, Nano liquid metal for the preparation of a thermally conductive and electrically insulating material with high stability. *RSC advances* (2018), vol. 8, pp. 16232-16242.
- M. H.I.B. Saad, M. H. B. Ahmad, Y. Z.Arief, H.hmad, M. Afendi Bin, M. Piah, Electrical Treeing and Morphological Analysis of Epoxy Nanocomposites with Different Concentrations of Silica Nanofillers. *Advanced Materials Research, (Trans Tech Publ: 2014)*, pp 567-572.

25. A. M. Pourrahimi, R. T. Olsson, M. S. Hedenqvist, The Role of Interfaces in Polyethylene/Metal-Oxide Nanocomposites for Ultrahigh-Voltage Insulating Materials. *Advanced Materials* (2018), vol. 30, p. 1703624.
26. D. Murdany, X. Chen, M. Andersson, D. Liu, U. Gedde, S. Gubanski, Electrical Treeing Behavior in Polyethylene Filled with Aluminum Oxide Nanoparticles. In *Proceedings of the Nordic Insulation Symposium* (2015).
27. K. Yoshimura, K. Nakano, K. Okamoto, T. Miyake, *Sensors and Actuators A: Physical* (2012), vol. 180, pp. 55-62.
28. J. Liu, L. Cui, N. Kong, C. J. Barrow, W. Yang, RAFT controlled synthesis of graphene/polymer hydrogel with enhanced mechanical property for pH-controlled drug release. *European polymer journal* (2014), vol. 50, pp. 9-17.
29. N. Kamarudin, J. A. Razak, N. Mohamad, N. Norddin, A. Aman, M. M. Ismail, R. Junid, T. Chew, Mechanical and Electrical Properties of Silicone Rubber Based Composite for High Voltage Insulator Application, *International Journal of Engineering & Technology* (2018), vol. 7, pp. 452-457.
30. P. Kannan, M. Sivakumar, K. Mekala, S. Chandrasekar, Resistance Analysis of Nano-Al (OH) 3 Filled Silicone Rubber Insulating Materials for High Voltage DC Applications. *Journal of Electrical Engineering and Technology* (2015), vol. 10, pp. 355-363.
31. M. Ali, M. A. Choudhry, Preparation and Characterization of EPDM-Silica Nano / Micro Composites for High Voltage Insulation Applications. *Materials Science-Poland* (2015), vol. 33, pp. 213-219.
32. V.M. Kulik, A.V. Boiko, S.P. Bardakhanov, H. Park, H.H. Chun, I. Lee, Viscoelastic Properties of Silicone Rubber with Admixture of SiO₂ Nanoparticles. *Materials Science and Engineering: A* (2011), vol. 528, pp. 5729-5732.
33. L.H. Meyer, E.A. Cherney, S.H. Jayaram, The Role of Inorganic Fillers in Silicone Rubber for Outdoor Insulation—Alumina Tri-Hydrate or Silica. *IEEE Electrical Insulation Magazine* (2004), vol. 20, pp. 13-21.
34. B. Dang, J. He, J. Hu, Y. Zhou, Tailored Spp/Silica Nanocomposite for Ecofriendly Insulation of Extruded HVDC Cable. *Journal of Nanomaterials* (2015), vol. 2015.
35. P.S. Liu, T.F. Li, C. Fu, Relationship between electrical resistivity and porosity for porous metals. *Materials Science and Engineering: A* (1999), vol. 268, pp. 208-215.
36. F. Wang, D. Yan, Y. Su, Y. Lu, X. Xia, H. Huang, Research on the Dielectric Properties of Nano-ZnO/Silicone Rubber Composites. In *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, (IOP Publishing: 2017), p 012060.
37. N. H. Ismail, M. Mustapha, A Review of Thermoplastic Elastomeric Nanocomposites for High Voltage Insulation Application. *Polymer Engineering & Science* (2018), vol. 58, pp. E36-E63.
38. M. A. Mazumder, H. Sheardown, A. Al-Ahmad, Functional Polymers (Springer International Publishing: Cham, 2018), pp 1-49.
39. L. Hongbo, Dielectrics under Electric Field. In *Electric Field*, (IntechOpen: 2017).
40. M. Takala, H. Ranta, P. Nevalainen, P. Pakonen, J. Pelto, M. Karttunen, S. Virtanen, V. Koivu, M. Pettersson, B. Sonerud, Effect of Low Amount of Nanosilica on Dielectric Properties of Polypropylene. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* (2010), vol. 17, pp. 1259-1267.
41. S. M. Haque, J. A. A. Rey, A. A. Mas'ud, Y. Umar, R. Albarracin, Electrical Properties of Different Polymeric Materials and their Applications: The Influence of Electric Field. *Properties and Applications of Polymer Dielectrics*. InTech (2017), pp. 41-63.
42. D. Pitsa, G.E. Vardakis, M.G. Danikas, Effect of Nanoparticles Loading on Electrical Tree Propagation in Polymer Nanocomposites. In *Proceedings of 2011 International Symposium on Electrical Insulating Materials*, (IEEE: 2011), pp 9-11.
43. I. Preda, J. Castellon, S. Agnel, P. Notingher, M. Fréchette, T. Heid, H. Couderc, N. Freebody, A.S. Vaughan, Conduction currents and time to frequency domain transformation for epoxy resin nanocomposites. In *2013 IEEE International Conference on Solid Dielectrics (ICSD)*, (IEEE: 2013), pp 1060-1063.
44. N.A.M. Jamail, M.A.M. Piah, N.A. Muhamad, Z. Salam, N.F. Kasri, R.A. Zainir, Q.E. Kamarudin, Effect of Nanofillers on the Polarization and Depolarization Current Characteristics of New LLDPE-NR Compound for High Voltage Application. *Advances in Materials Science and Engineering* (2014), vol. 2014.
45. M. Aganbegović, M.T. Imani, P. Werle, Electrical Conductivity in Specially Doped Silicone Layers under DC Stress. In *The International Symposium on High Voltage Engineering*, (Springer: 2019), pp 211-220.
46. S. Appukuttan, K. Joseph, Immobilizing polymer chains in chlorobutyl rubber nanocomposites. *Society of Plastics Engineers Plastics Research Online* (2014), pp. 1-2.
47. I. Franta: *Elastomers and rubber compounding materials*. (Elsevier, 2012).
48. H. Mark: *Encyclopedia of space science & technology*. (Wiley-Interscience, 2003).
49. M. Ehsani, H. Borsi, E. Gockenbach, G.R. Bakhshandeh, J. Morshedian, An investigation of dynamic mechanical, thermal, and electrical properties of housing materials for outdoor polymeric insulators. *European Polymer Journal* (2004)40, 2495-2503.
50. I. Saini, A. Sharma, J. Rozra, R. Dhiman, S. Aggarwal, P. K. Sharma, Modification of Structural, Thermal, and Electrical Properties of PVA by Addition of Silicon Carbide Nanocrystals. *Journal of Applied Polymer Science* (2015), vol. 132.
51. D. Liu, J. Chen, L. Song, A. Lu, Y. Wang, G. Sun, Parameterization of Silica-Filled Silicone Rubber Morphology: A Contrast Variation SANS and TEM Study. *Polymer* (2017), vol. 120, pp. 155-163.