

石墨烯复合软材料人工肌肉传热性能的研究

石强盛杰^{1a,1b}, 黎相孟^{1a,1b,2}, 药芳萍^{1a,1b}

(1. 中北大学 a. 机械工程学院; b. 先进制造技术山西省重点实验室, 山西 太原 030051;
2. 西安交通大学 机械工程学院, 陕西 西安 710049)

摘要: 驱动模块是软体机械手中最重要的组成部分之一。针对现有技术进行改进创新, 在原有复合软材料中加入石墨烯, 质量分数为 0.5~3 wt.%, 探究其对人工肌肉驱动过程中热传导能力的影响。在 100 °C 恒温加热平台上对各组样品进行加热升温, 利用热成像仪拍摄样品的升温过程, 使用 DZDR-S 型导热仪测量样品的导热系数与热扩散系数, 使用激光共聚焦显微镜对各组样品表面形貌进行表征。实验结果表明: 石墨烯的加入改善了复合材料传热性能, 其含量为 3 wt.% 时效果最好, 且石墨烯在混合物中更好的分散能改善复合软体材料的传热能力。

关键词: 石墨烯; 驱动; 复合软材料; 导热; 人工肌肉

中图分类号: TH145.4 **文献标志码:** A **文章编号:** 1671-5276(2022)02-0019-04

Study on Performance of Doped Graphene for Improving Artificial Muscle Heat Transfer of Composite Soft Materials

SHI Qiangshengjie^{1a,1b}, LI Xiangmeng^{1a,1b,2}, YAO Fangping^{1a,1b}

(1. a. School of Mechanical Engineering; b. Shanxi Key Laboratory of Advanced Manufacturing Technology, North University of China, Taiyuan 030051, China;
2. School of Mechanical Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: Drive module is the most important part of soft manipulator. To improve and innovate the existing technology, grapheme was added into the original composite soft material with mass fraction as 0.5-3 wt.%, and whose influence on the heat transfer ability of artificial muscle during the driving process was explored. The samples were heated on a 100 °C constant temperature heating platform, and its heating process was photographed by a thermal imager. The thermal conductivity and thermal diffusivity of the samples were measured by DZDR-S thermal conductivity meter. Laser confocal microscopy was used to characterize the surface morphology of the samples. The experimental results show that the graphene-adding improves the heat transfer performance of the composites, with the best effect at the time when the content of graphene is 3 wt.% and the better graphene dispersion in mixture which can improve the heat transfer ability of the composite.

Keywords: graphene; drive; composite soft material; heat conduction; artificial muscle

0 引言

在软体机械手^[1-2]的发展过程中, 驱动结构是最重要的组成部分之一。人工肌肉^[3-4]的问世促进了软体机器人^[5]的发展。人工肌肉一般指在外界因素刺激下发生弯曲变形膨胀等运动状态以此对外做功的柔性部件, 其刺激方式包括光^[6-7]、电^[8]、热^[9]及压差^[10]等。美国哥伦比亚大学机械工程系 MIRIYEV A 等^[11]研制了一种柔韧性较好的复合材料用于制作人工肌肉, 其具有高应变和高应力, 内部掺杂的无水乙醇在电热丝的加热下实现液-汽相变的极端体积变化, 驱动人工肌肉膨胀并对外界做功, 实现驱动功能。除此之外, 较低的成本及较好的环境友好性使得这种复合材料具有良好的发展前景。

然而, 电-热驱动人工肌肉的方式决定了复合材料传

热性能是影响软体机械手工作效率的重要因素之一^[12]。更加优异的热传导能力意味着更快的响应速度及更高效的工作效率, 能大大加强软体机械手^[13]的工作能力。传统的硅橡胶柔性好、质量轻、耐腐蚀、耐疲劳且绝缘性能好, 但材料热导率较低, 传热性能有待提高。而石墨烯是一种单层碳原子堆积形成的二维晶体结构, 常温下热导率高达 5 300 W/(m·K)^[14]。将石墨烯加入到硅橡胶中制备导热性更好的复合材料^[15]。复合材料的导热性能能得到很大提升, 使得人工肌肉在工作时能更快速膨胀, 大大提升软体机械手的工作效率^[16]。

本文通过向复合软材料^[17]中掺杂石墨烯来制备人工肌肉样品, 通过改变石墨烯的质量分数, 探究石墨烯的含量对于复合材料导热性能的影响。使用加热平台及热成像仪获得样品温度变化过程, 使用导热仪测定样品的导热系数及热扩散系数, 分析不同配比的石墨烯对复合材料热

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金资助项目(51705479); 中国博士后科学基金项目(2019M663683); 校级科技立项(20201704)

第一作者简介: 石强盛杰(1994—), 男, 山东济南人, 硕士研究生, 研究方向为软体机器人及软材料、微纳加工。

传导能力的影响,为后期将复合材料制备的人工肌肉应用于软体机械手提供参考。

1 实验

1.1 实验材料

基质材料选用延展性较好铂催化的双组分硅橡胶 Ecoflex00-50 (Smooth-On, 宾夕法尼亚州, 美国), 参数如表 1 所示; 石墨烯选用单层石墨烯 (深圳某公司, 中国), 参数如表 2 所示; 相变材料为无水乙醇 (天津某公司, 中国)。

表 1 Ecoflex00-50 参数

混合比例	固化时间/h	断裂伸长率/%	混合黏度/cps	邵氏硬度/HA	拉伸强度/MPa	收缩率/%
A:B=1:1	3	980	8 000	00~50	2.17	<0.001

表 2 石墨烯参数

层数	碳含量/%	接杆氧含量	片径(D50)/ μm	径厚比	堆积密度/(g/ml)	含水量/%	比表面积/(m^2/g)
1-3	98	极少	7~12	9 500	0.01~0.02	<2	50~200

1.2 样品制备

首先,将 Ecoflex00-50 的 A 部分与 B 部分按 1:1 的比例分别称取 10 g, 共计 20 g; 然后按照 20 wt.% 量取无水乙醇 4 g, 石墨烯的含量为 0.5 wt.%、1 wt.%、1.5 wt.%、2 wt.%、2.5 wt.%、3 wt.%, 将不同含量的石墨烯加入称量好的无水乙醇中, 分别超声震荡 30 min; 最后将各组充分混合搅拌 10 min; 最后将搅拌好的胶体倒入模具中, 室温下固化 3 h, 得到 6 组含石墨烯人工肌肉的样品以及一组不含石墨烯的空白对照 (图 1)。制备流程图如图 2 所示。



图 1 复合材料人工肌肉样品

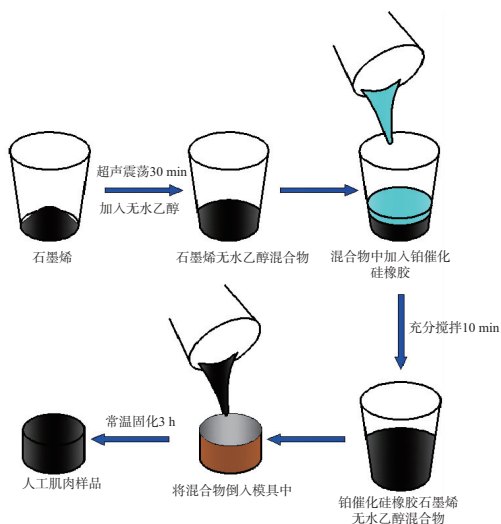


图 2 样品制备流程图

1.3 表征及测量

在室温封闭环境下使用恒温加热平台在 100℃ 下加热各组分样品, 并使用热成像仪 (图 3) 拍摄各组样品加热过程的温度变化情况。之后采用 DZDR-S 型导热仪测量各组人工肌肉样品的导热系数与热扩散系数, 探究各组样品的导热性能变化与石墨烯含量的关系 (图 4)。

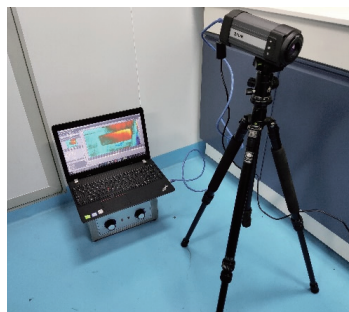


图 3 热成像仪

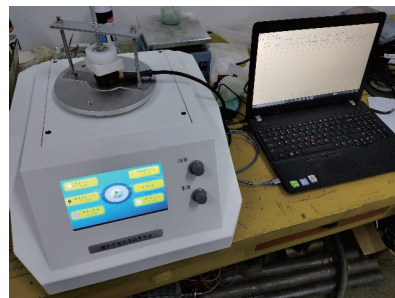


图 4 DZDR-S 型导热仪及样品夹持平台

2 结果与讨论

2.1 温度变化分析

为了探究复合材料在掺杂石墨烯后的传热能力, 本文采用热成像实验来探究石墨烯含量占比不同对复合材料导热性能的影响 (图 5)。在室温封闭的环境下, 使用恒温加热平台加热至 100℃, 保持温度不变, 分两组放置圆柱状复合材料人工肌肉样品于加热平台上, 复合材料样品石墨烯含量从 1 到 7 依次为 0 wt.%、0.5 wt.%、1.0 wt.%、1.5 wt.%、2.0 wt.%、2.5 wt.%、3.0 wt.% (图 6)。使用热成像仪拍摄各个样品的温度变化情况, 从 0 s 开始每隔 20 s 记录一次温度。单个样品一共截取 17 组数据, 并绘制如图 7 所示点线图。

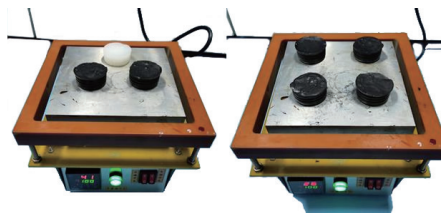


图 5 恒温加热平台加热复合材料样品

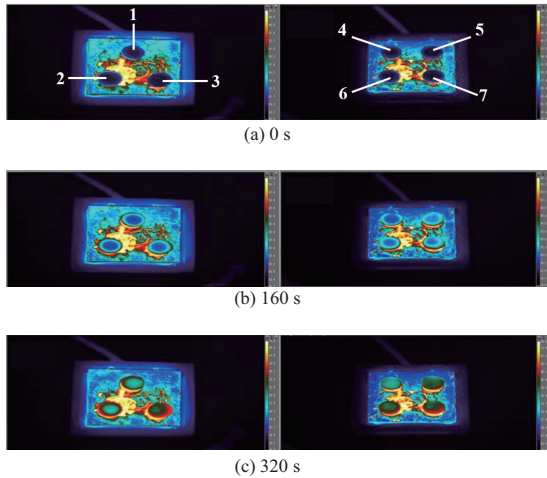


图6 样品温度变化

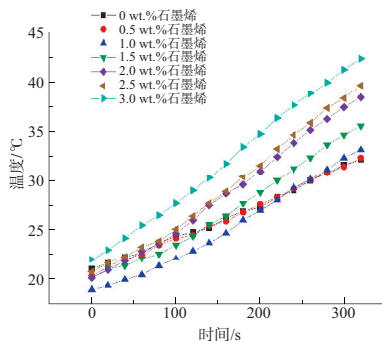


图7 复合材料样品温度随时间变化点线图

由图7可以看出,在封闭的室温环境下复合材料样品在恒温加热平台加热的过程中升温趋势整体相同,各个组分样品随时间增加温度上升。升温过程中,石墨烯含量为0.5 wt.%的复合材料人工肌肉样品温度变化情况与不含石墨烯的空白对照样品基本相同,石墨烯含量为1 wt.%、1.5 wt.%、2 wt.%、2.5 wt.%、3 wt.%的5组样品虽然在放置过程中初始温度有细微差别,但是在升温过程中不论是升温速度还是实验结束时达到的最高温度均高于不含石墨烯的空白对照样品与石墨烯含量为0.5 wt.%的人工肌肉样品,且随人工肌肉样品石墨烯含量增加,样品的升温速度以及同一时间下所达到的温度逐渐增大,复合材料的导热性能逐渐增强。但是根据现有的研究表明,石墨烯的占比与材料传热性能的关系并不是始终呈现正相关,而是先升后降的关系。

2.2 复合材料导热系数与热扩散系数测量与分析

随后采用瞬态平面热源法使用DZDR-S型导热仪测量组分配比不同的人工肌肉样品的导热系数及热扩散系数,进一步探究石墨烯含量不同的复合材料人工肌肉样品导热能力与石墨烯含量的基本关系。各组样品的导热系数曲线如图8所示,热扩散系数如图9所示。

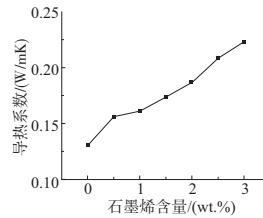


图8 导热系数点线图

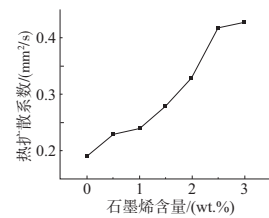


图9 热扩散系数点线图

由图8、图9点线图可以看出,掺杂石墨烯的复合材料人工肌肉样品的导热系数与热扩散系数总体呈上升趋势,材料的导热系数与热扩散系数随石墨烯含量增加而上升且均高于不含石墨烯的空白对照样品。混合石墨烯样品的导热系数按照所含石墨烯质量分数从小到大分别比不含石墨烯的空白对照样品提高了19.37%、23.51%、32.77%、43.26%、59.26%和71.21%;热扩散系数则提高了21.05%、26.32%、47.37%、73.68%、121.05%和126.32%。由此可见,掺杂石墨烯的复合材料导热性能优于不含石墨烯的复合材料,且复合材料的传热能力随石墨烯含量占比的增加而增加。

导热系数是指:在稳定传热条件下,1 m厚的材料,两侧表面的温差为1 K,在一定时间内,通过1 m²面积传递的热量,单位为W/(m·K)。根据傅里叶定律,热导率的定义式为

$$k_x = -\frac{q_x''}{\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right)}$$

其中: x 为热流方向; q_x'' 为该方向上的热通量,W/m²; $\frac{\partial T}{\partial x}$ 为该方向上的温度梯度,K/m。

对于各向同性的材料来说,各个方向上的热导率是相同的。

热扩散系数是物体中某一点温度的扰动传递到另一点的速率量度。以物体受热升温的情况为例分析,在物体受热升温的非稳态导热过程中,进入物体的热量沿途不断地被吸收而使局部温度升高,此过程持续到物体内部各点温度全部相同为止。热扩散系数可由下式求得:

$$\alpha = \frac{\lambda}{\rho c}$$

式中: α 为热扩散率或热扩散系数,m²/s; λ 为导热系数,W/(m·K); ρ 为密度,kg/m³; c 为比热容,J/(kg·K)。

由此可见,更高的导热系数意味着同一方向更大的热通量,复合材料的热传导能力更加优异。更高的热扩散系数说明复合材料内部能更快达到相同且更高的温度,进一步说明材料的导热能力随二者的增大而增强。

2.3 观测微观形貌

使用激光共聚焦显微镜(OLYMPUSOLS5000,奥林巴斯有限公司)观测石墨烯含量0.5 wt.%~3 wt.%的复合材料人工肌肉样品表面微观形貌,如图10所示。

从图10可以看出,随着石墨烯的含量增加,图中黑色物质则更加密集,更有利于传导热量。但微观下石墨烯由

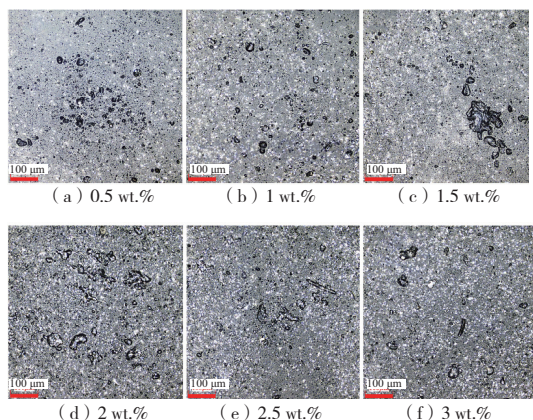


图 10 聚焦显微镜下观测图

于分散不够均匀存在一定团聚现象(图中黑色斑点),一定程度影响复合材料导热网络的搭建以及材料的热传导性能。

3 结语

通过制备石墨烯含量不同的人工肌肉样品,使用恒温加热平台在 100℃ 下加热各组样品,并使用热成像仪拍摄加热过程中各组样品温度变化情况;使用 DZDR-S 型导热仪测量各组样品的导热系数与热扩散系数,进一步探究石墨烯含量的增加对二者的影响;使用激光共聚焦显微镜观测各组样品的表面微观形貌。得到以下结论:

1) 石墨烯的加入可以改善复合材料人工肌肉的传热性能,且复合材料的传热能力在一定范围内与石墨烯的占比呈正相关,即在实验中石墨烯含量为 3 wt.% 时复合材料传热性能较好,石墨烯含量超过 3 wt.% 的复合材料在一定范围内依然会呈现质量分数越大,导热性能越强的趋势,但随着含量增加,石墨烯团聚现象的发生会更加显著,这种传热导热会趋于平缓甚至趋于下降。除此之外,石墨烯含量的增加也会导致制造成本的显著上升。对于人工肌肉而言,更好的传热能力意味着材料能更快速地膨胀,从而驱动软体机械手的手指运动,实现更高工作效率;

2) 石墨烯在铂催化硅橡胶中的分散效果影响着复合材料的传热性能,更有效的物理、化学方法可以减少石墨烯的团聚现象,增加石墨烯在硅橡胶中的分散水平,可以大大提高复合材料的传热能力。

参考文献:

[1] LI S, TIAN H, SHAO J, et al. Switchable adhesion for nonflat surfaces mimicking geckos' adhesive structures and toe muscles [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2020, 12(35): 39745-39755.

[2] WANG Y, HU H, SHAO J, et al. Fabrication of well-defined mushroom-shaped structures for biomimetic dry adhesive by conventional photolithography and molding [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2014, 6(4): 2213-2218.

[3] TIAN H, LIU H, SHAO J, et al. An electrically active gecko-effect soft gripper under a low voltage by mimicking gecko's adhesive structures and toe muscles [J]. Soft Matter, 2020, 16(24): 5599-5608.

[4] PINAR U, PRADERE B, ROUPRET M. Artificial intelligence in bladder cancer prognosis: a pathway for personalized medicine [J]. Current Opinion in Urology, 2021, 31(4): 404-408.

[5] TIAN H M, LI X M, SHAO J Y, et al. Gecko-effect inspired soft gripper with high and switchable adhesion for rough surfaces [J]. Advanced Materials Interfaces, 2019, 6(18): 1900875.

[6] GUIX M, MESTRE R, PATIO T, et al. Biohybrid soft robots with self-stimulating skeletons [J]. Science Robotics, 2021, 6(53): eabe7577.

[7] XU L L, PENG Q Y, ZHAO X, et al. A photoactuator based on stiffness-variable carbon nanotube nanocomposite yarn [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2020, 12(36): 40711-40718.

[8] ZAKERI R, ZAKERI R. Deformable airfoil using hybrid of mixed integration electrolysis and fluids chemical reaction (HEFR) artificial muscle technique [J]. Scientific Reports, 2021, 11: 5497.

[9] ALI I, ALI A, ALI A, et al. Highly electro-responsive composite gel based on functionally tuned graphene filled polyvinyl chloride [J]. Polymers for Advanced Technologies, 2021, 32(9): 3679-3688.

[10] KOJIMA A, OKUI M, HISAMICHI I, et al. Straight-fiber-type artificial muscle deformation under pressurization [J]. IEEE Robotics and Automation Letters, 2019, 4(3): 2592-2598.

[11] MIRIYEV A, STACK K, LIPSON H. Soft material for soft actuators [J]. Nature Communications, 2017, 8(1): 596.

[12] 邢志广, 林俊, 赵建文. 人工肌肉驱动器研究进展综述 [J]. 机械工程学报, 2021, 57(9): 1-11.

[13] 张进华, 王韬, 洪军, 等. 软体机械手研究综述 [J]. 机械工程学报, 2017, 53(13): 19-28.

[14] 宋厚甫, 康飞宇. 石墨烯导热研究进展 [J/OL]. 物理化学学报, 2022, 38(1): 2101013. [2021-05-23]. <http://www.whxb.pku.edu.cn/CN/10.3866/PKU.WHXB202101013>.

[15] 王军, 胡晓丹, 吴新健, 等. 导热绝缘有机硅复合材料的制备与性能 [J]. 高分子材料科学与工程, 2018, 34(10): 140-145.

[16] 文芳, 杨波, 李悦, 等. 石墨烯导热硅橡胶的研究进展 [J]. 化工新型材料, 2020, 48(7): 38-42.

[17] 陈尤旭, 王德山, 张伟, 等. 面向软体机器人的 3D 打印硅胶软材料实验研究 [J]. 中国机械工程, 2020, 31(5): 603-609, 629.

收稿日期: 2021-07-14