

## Аналіз теплопровідності полімерних нанокompatитів наповнених вуглецевими нанотрубками та технічним вуглецем

Р.В. Дінжос<sup>1,\*</sup>, Н.М. Фіалко<sup>2</sup>, Е.А. Лисенков<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Миколаївський національний університет ім. В.О. Сухомлинського,  
вул. Нікольська, 24, 54030 Миколаїв, Україна

<sup>2</sup> Інститут технічної теплофізики НАН України, вул. Желябова, 2-а, 03680 Київ, Україна

(Одержано 27.11.2013; опубліковано online 06.04.2014)

Представлені результати експериментальних і розрахункових досліджень теплофізичних характеристик частково-кристалічного поліетилену і нанокompatитів, які містять від 0,3 до 2,5 мас. % технічного вуглецю та нанокompatитів, які містять від 0,2 до 1,5 мас. % вуглецевих нанотрубок. Представлені основи теорії ефективного середовища та теорія перколяції та як вони корелюють з експериментальними даними. Вивчено особливості впливу структури полімерних compatитів на їх теплофізичні властивості. Зроблений порівняльний аналіз провідності композицій в залежності від геометрії та розмірів наповнювача.

**Ключові слова:** Вуглецеві нанотрубки, Технічний вуглець, Коефіцієнт теплопровідності, Перколяція, Полімерні нанокompatити.

PACS numbers: 61.46.Fg, 63.22. – m

### 1. ВСТУП

Полімерні композиційні матеріали (ПКМ), де у якості наповнювача використовується технічний вуглець (сажа), мають широке застосування у окремих галузях теплоенергетичного комплексу. Основні переваги таких ПКМ – мала вага, стійкість до корозії, легкість обробки, дешевий наповнювач тощо. Виходячи з потреб виробництва значний інтерес представляє отримання ПКМ, з одного боку, з невеликою теплопровідністю порівняно з чистою полімерною матрицею, а з іншого боку з покращеними функціональними характеристиками, які забезпечуються зменшенням розміру, а отже і зміншенням вмісту наповнювача.

На сьогодні більшість виробів теплоенергетичного комплексу створюється на основі ПКМ, які містять мікророзмірні частинки (сажа, скловолокно, крейда тощо). Останнім часом у літературі з'явилися роботи в яких доповідається про створення ПКМ, які містять нанорозмірні наповнювачі. Використання нанопаповнювачів дозволяє створити ПКМ з таким же комплексом функціональних характеристик, як і ПКМ з мікро розмірними частинками, але при меншому вмісті наповнювача.

Відомо, що для більшості ПКМ, в області концентрацій до критичної, майже не відбувається збільшення теплопровідності ( $\lambda \approx \text{const}$ ), що є визначним при отриманні виробів теплоенергетичного комплексу [1]. Однак для удосконалення технології створення ПКМ з покращеними властивостями необхідно розуміння фізичних механізмів теплопереносу в даних системах.

У роботах [2-6] де були використані як наповнювачі у полімерній матриці графіт, сажа (технічний вуглець), вуглецеві волокна, керамічні або металеві частинки, було показано, що значний розкид даних по теплопровідності, як правило, зв'язаний з різною

теплопровідністю наповнювачів. Це обумовлено декількома факторами, у тому числі: чистотою наповнювача, його кристалічністю, розміром частинок і методом вимірювання. Важливо також відзначити, що у зазначених роботах стрибкоподібне зростання теплопровідності при певному критичному вмісті провідного наповнювача відбувається менш ніж на порядок (для електропровідності величина стрибка складає декілька порядків). Це на нашу думку пов'язано з відсутністю прямого контакту частинок наповнювача, який є визначальним для механізму теплопереносу. Аналізуючи області використання ПКМ можна зазначити, що перспективним є створення теплоізоляційних матеріалів з покращеним спектром механічних, бар'єрних властивостей, які можуть бути використані при отриманні виробів тепло-енергетичного комплексу.

З вище сказаного метою даної роботи є дослідження впливу наповнювача однакової хімічної природи, але різної геометрії та розмірів на теплопровідність ПКМ, та теоретичний аналіз механізмів теплопровідності полімерних compatитів, які містять вуглецевий наповнювач.

### 2. ЕКСПЕРИМЕНАЛЬНА ЧАСТИНА

#### 2.1 Характеристика матеріалів дослідження

Як полімерну матрицю для дослідження використовували промисловий поліетилен (ПЕ) (виробник: SABIC@HDPE. Company Eurotrubplast Holding Company Ltd Trusthose) та композити, які містили до 2,5 мас. % технічного вуглецю (ТВ) та до 1,5 мас.% вуглецевих нанотрубок (ВНТ). Даний полімерний гранулят використовується як сировина при виготовленні виробів теплоенергетичного комплексу.

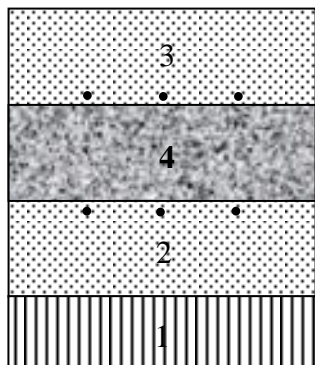
Як наповнювачі використовували технічний вуглець та вуглецеві нанотрубки, які мають

\* [dinzhos@mail.ru](mailto:dinzhos@mail.ru)

однакову хімічну природу, але відрізняються за розміром і геометрією. Частинки технічного вуглецю мають розмір 100-120 нм. Поверхня частинок володіє пористкістю, за рахунок наповзань одного шару на інший. Питома поверхня 10-25 м<sup>2</sup>/г. Вуглецеві нанотрубки (виробник ВАТ «Спецмаш» (Україна)). Виготовлені методом CVD з етилену [7] (англ. Chemical vapor deposition – хімічне парофазного осадження). Зміст мінеральних домішок складає ~ 0,1%. Питома площа поверхні S ВНТ, визначена адсорбцією N<sub>2</sub> становить 190 м<sup>2</sup>/г. Зовнішній діаметр ВНТ, визначений за допомогою методу малокутового розсіяння рентгенівських променів, становить 20 нм, довжина (1 ± 5) мкм, товщина стінок ~ 5 нм [8].

## 2.2 Методи дослідження

Структура для безпосереднього дослідження ПКМ на основі поліетилену та вуглецевих наповнювачів готували методом гарячого пресування. Попередньо, вихідні компоненти у порошкоподібному стані змішували протягом однієї години магнітним змішувачем. Теплопровідність досліджуваних зразків вимірювали використовуючи прилад ИТ-λ-400 (вимірювач теплопровідності), з удосконаленою коміркою (рис. 1), згідно з методом, який представлено у роботі [9].



**Фиг. 1** – Схематичне креслення, що показує комірку для вимірювання теплопровідності: ● – датчики температури, 1 – нагрівач; 2 – нижня контактна пластина; 3 – верхня контактна пластина; 4 – вимірювальний зразок.

## 3. РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Згідно з літературними даними [10] для опису теоретичних уявлень про механізм теплопровідності використовують теорію ефективного середовища та теорію перколяції.

Перенос тепла, з позицій фоновної теорії, можна уявити як поширення енергії за допомогою руху фронту пружною теплової хвилі, який поширюється зі швидкістю звуку. При цьому використовується, відома з кінетичної теорії газів, формула Дебая [11]:

$$\lambda = \frac{1}{3} \rho c v_{zs} \bar{l}, \quad (1)$$

де  $\lambda$  – коефіцієнт теплопровідності,  $c$  – питома теплоємність,  $\rho$  – густина,  $v_{zs}$  – швидкість звуку у речовині,  $\bar{l}$  – середня довжина вільного пробігу фоновнів.

Однак фоновна модель теплопровідності (1) хоч і дає цілком прийнятне якісне пояснення поведінки більшості реальних тіл (полімерів), але кількісно, вона не в змозі пояснити ні абсолютне значення  $\lambda$ , ні реальну її температурну залежність від низьких температур до температур деструкції.

Висновки фоновної теорії в цілому прийнятні і для полімерів, однак, необхідно враховувати їх специфіку, яка полягає, насамперед у: анізотропії всередині і міжмолекулярних взаємодіях; щільності упаковки і спектрі упорядкування макромолекул; гнучкості молекулярних ланцюгів і молекулярної рухливості; ступеня кристалічності; розмірах кристалітів, сферолітів та інших структурних одиниць; дефектності структури тощо.

Для опису процесів теплопереносу в ПКМ необхідно знати залежність ефективної теплопровідності наповненого полімеру від геометрії, орієнтації, фізико-хімічних особливостей взаємодії, теплофізичних параметрів, концентрації та розподілення вхідних у композицію компонентів.

Найбільш поширеним методом теоретичного дослідження теплопровідності гетерогенних систем є метод узагальненої провідності, заснований на аналогії між диференціальними рівняннями стаціонарного теплового потоку, електричного струму, дифузії, діелектричної проникності, магнітній сприйнятливості та ін. [12]. Теорія узагальненої провідності дає прийнятні результати, якщо враховується реальна структура матеріалу, пористість системи, розміри частинок і пор, способи контактування частинок, вплив кондуктивної, конвективної та радіаційної складових на ефективну теплопровідність системи.

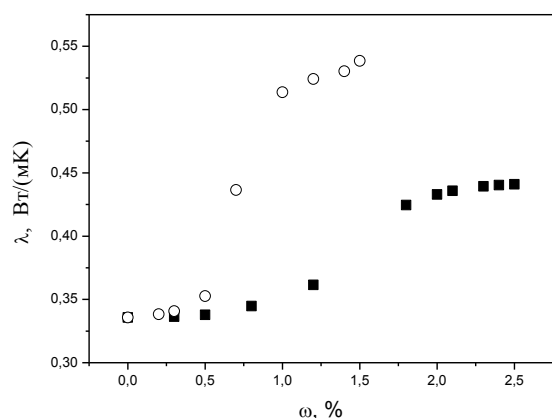
До класичної теорії провідності відноситься рівняння Максвелла, який розраховував поле системи, для ізотропного середовища, в яке вкраплені сторонні частинки сферичної форми. Відстань між частинками передбачалося достатньо великим для того, щоб можна було знехтувати їх взаємодією. Отримана розрахункова формула має вигляд [13]:

$$\lambda_{efb} = \lambda_1 \left( \frac{\lambda_2 + 2\lambda_1 - 2\nu(\lambda_1 - \lambda_2)}{\lambda_2 + 2\lambda_1 + \nu(\lambda_1 - \lambda_2)} \right), \quad (2)$$

де  $\lambda_{efb}$  – ефективна теплопровідність гетерогенної системи;  $\lambda_1$  – теплопровідність безперервної фази;  $\lambda_2$  – теплопровідність диспергованої фази;  $\nu$  – об'ємна концентрація диспергованої фази.

Представлені моделі ґрунтуються на адитивному вкладі частинок наповнювача, які хаотично розподілені у полімерній матриці. Однак експеримент показує, що істотну роль у процесі теплопереносу у ПКМ грають не тільки властивості і відносний вміст індивідуальних компонентів, але й: агрегація частинок наповнювача, що приводить, при досягненні концентрацією певного порогового значення, до встановлення "провідних каналів", при цьому виникає різка зміна провідності; зміна фізичних властивостей полімеру на межі розділу наповнювач-полімер, внаслідок взаємодії полімерної матриці з поверхнею частинок наповнювача; розпушення полімерної матриці, визначальним стає наявність у композиції третього компоненту – пор [14].

Процес утворення провідних каналів та наявність стрибкоподібної зміни провідності неоднорідних



**Рис. 2** – Залежність коефіцієнта теплопровідності полімерних композиційних матеріалів від процентного вмісту: технічного вуглецю – квадрати; вуглецевих нанотрубок – пусті кола

матеріалів з рівномірним розподілом компонентів успішно описується за допомогою теорії перколяції [15].

Теорія перколяції розглядає випадковий розподіл провідного компонента в непровідному середовищі і дає концентраційну залежність ефективної теплопровідності ( $\lambda_{ef}$ ) у вигляді [15]:

$$\lambda_{ef} = \lambda_1 \left( \frac{v_1 - v_c}{1 - v_c} \right)^k, \quad (3)$$

де  $\lambda_1$  – теплопровідність полімерної матриці;  $v_1$  – об’ємна концентрація провідного середовища (наповнювача),  $v_c$  – критична концентрація провідного середовища (наповнювача),  $k$  – критичний індекс.

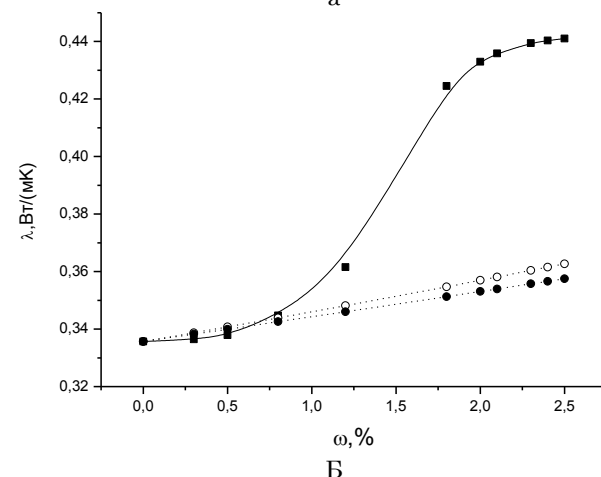
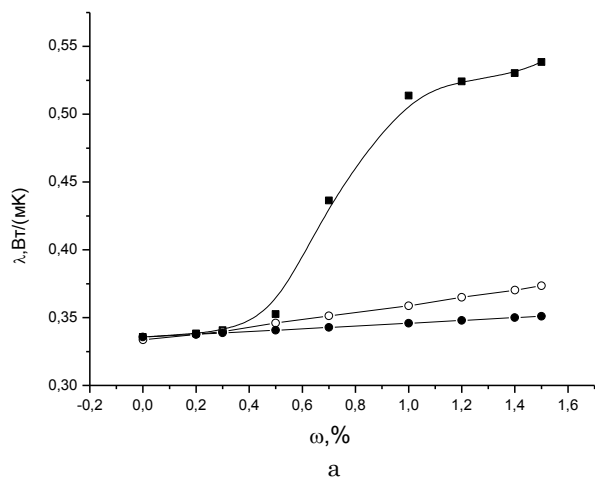
Виміряна теплопровідність для композитів ПЕТВ та ПЕВНТ при 50 °С наведені на рис. 2. Спостерігається збільшення коефіцієнту теплопровідності діапазоні 0,8-1,8 мас. % (рис. 2) та від 0,5 до 1,0 мас. % (рис. 3). Для композиції ПЕТВ збільшення теплопровідності становило 0,11 Вт/мК, тоді як для композиту ПЕВНТ збільшення становило 0,2 Вт/мК. Результат, який був отриманий, щодо абсолютного збільшення значення теплопровідності є спів розмірним порівняно з іншими дослідженнями [16-22] де були використані вуглецеві нанотрубки, але наповнення їх становило до 4 мас. %.

Для опису експериментальних даних були використані основні теоретичні моделі ефективного середовища для даних композицій [23-26]. Це модель Максвела (рів. 2) та модель Оделевського для хаотично розподілених частинок. Розрахункова формула для статистичної моделі:

$$\lambda_{ef} = \frac{(3v_1 - 1)\lambda_1 + (3v_2 - 1)\lambda_2}{4} \times \sqrt{\left( \frac{(3v_1 - 1)\lambda_1 + (3v_2 - 1)\lambda_2}{4} \right)^2 + \frac{\lambda_1\lambda_2}{2}}, \quad (4)$$

де  $v_1$  та  $v_2$  – об’ємна концентрація компонентів;  $\lambda_1$  і  $\lambda_2$  – теплопровідність компонентів.

На рис. 3 представлені результати відповідності експериментальних та теоретичних даних. З даних проведеного дослідження чітко видно, що теорія ефективного середовища області концентрацій, коли частинки на відносно великих відстанях одна від одного. Обидві моделі ефективного середовища чітко описують концентраційну поведінку полімерних композитних композитів. При подальшому збільшенні наповнення, значення теплопровідності значно відрізняється від теоретичних уявлень ефективного



**Рис. 3** – Залежність коефіцієнта теплопровідності ПКМ від процентного вмісту: а) технічного вуглецю; б) вуглецевих нанотрубок. Квадрати – експеримент, кола – за теорією Максвела, кола (порожні) – модель Оделевського

середовища. Збільшення наповнення скоріш за все приводить до утворення провідних каналів, які значно підвищують теплопровідність. З літературних даних [1] відомо, що коефіцієнт теплопровідності для технічного вуглецю знаходиться в межах 6 ~ 174 Вт/мК, а для вуглецевих нанотрубок 2000 ~ 6000 Вт/мК. У двох випадках теплопровідність поліетилену не на один порядок відрізняється від теплопровідності наповнювачів, але при їх змішуванні значного підвищення коефіцієнта теплопровідності не відбувається.

Ефект різкої зміни теплопровідності присутній – це означає, що провідний кластер утворюється, не лише через прямий контакт, а й через деякий

проміжок між частинками (рис. 4). Скоріш за все ця відстань більша за Дебаєвську довжину – це означає, що механізм тунелювання електронів не працює. В момент змішування між вуглецевими нанотрубками присутній поліетилен, а тому в місті зазначеного проміжку відбувається значна втрата провідності. Єдиний дієвий механізм, який залишається – це транспорт фононів, який відбувається у самій полімерній матриці поліетилену, але кількість теплоти, яка переноситься за одиницю часу фононами на порядки менша ніж теплота, що переноситься електронами.

В середині самої трубки теплопровідність не втрачається (біла лінія (рис. 4)) в місті контакту відбувається втрата теплопровідності (так як передача

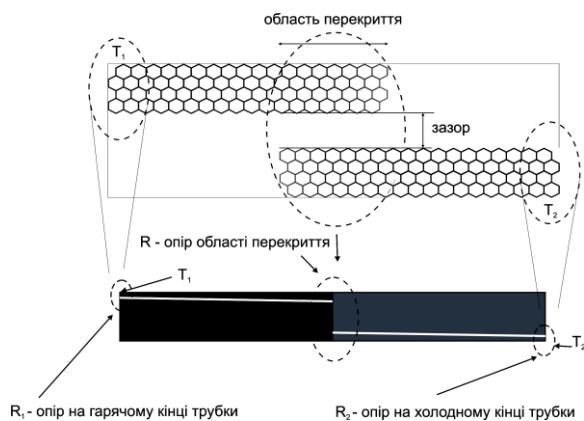


Рис. 4 – Схема двохвимірної контакту двох найближчих вуглецевих нанотрубок [21]

тепла відбувається тільки по фононному механізму). Далі в середині наступної трубки втрат теж не відбувається.

Для підтвердження факту значного зменшення коефіцієнту теплопровідності у місці контакту приведені результати експериментального дослідження зазначених композиційних матеріалів на основі поліетилену (рис. 5).

На рис. 5 представлена залежність теплового опору від температури. Для полімерів які є структурно досконалими кристалічними діелектриками (до яких належить поліетилен), температурна залежність теплового опору повинна описуватися прямою, яка проходить через початок координат (тобто  $W = 0$  при  $T = 0$ ) [27, 28]. Якщо величина теплового опору  $W \sim 1/\lambda$  описуватися рівнянням (4) та  $W_1 = 0$ , тоді механізм теплопередачі визначається трьофононою взаємодією [27].

$$W = W_1 + W_0 T, \quad (5)$$

де  $W_1$  – температурно-інваріантний внесок у тепловий опір обумовлений наявністю дефектів [29]. За відсутні дефектів графік залежності  $W(T)$  повинен описуватись прямою лінією, яка проходить через початок координат. (рис. 5, графік 1). Для малодфектного ПЕ – це має своє експериментальне підтвердження. Цей результат можна пояснити високою густиною молекулярної упаковки в

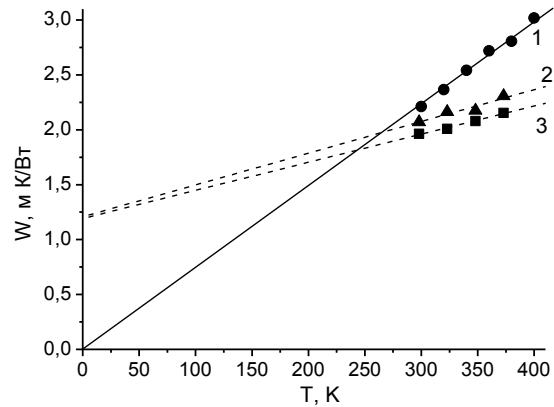


Рис. 5 – Температурна залежність теплового опору для поліетилену (кола)(ПЕ) – 1; ПЕТВ-2,5 (трикутники) – 2; ПЕВНТ-1,5 (квадрати) – 3

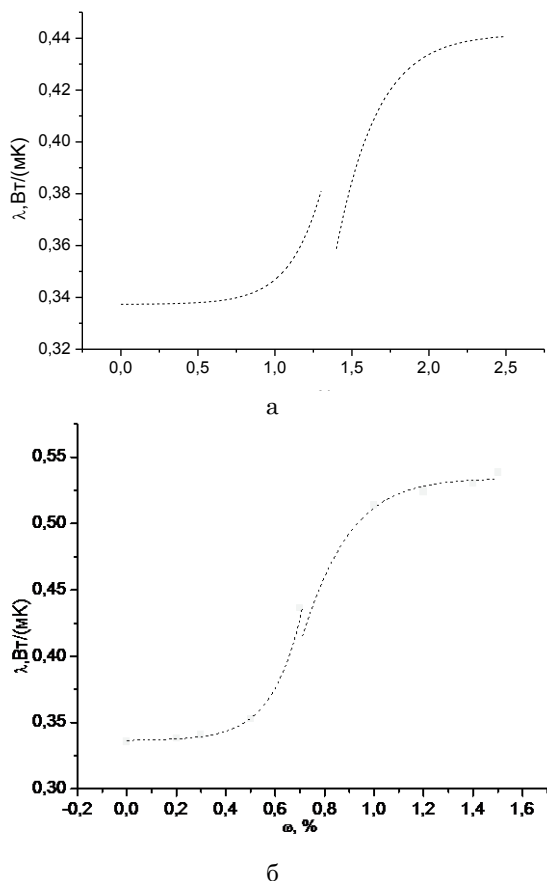
кристалічній ґратці симетричних макромолекул ПЕ. Таким чином для ПЕ у рівнянні (4)  $W_1 \sim 0$ . Тобто домінуючий внесок у теплопередачу у кристалічній фазі ПЕ є трьофононна взаємодія (тобто, внаслідок передачі тепла два фонони з хвильовими векторами  $q_1, q_2$  та частотами  $\omega_1, \omega_2$  можуть обмінятися енергіями в результаті чого відбудеться перехід у стан з хвильовим вектором  $q_3$  та частотою  $\omega_3$  (можливий і зворотній процес)).

Для композитів на основі ПЕ (ПЕТВ, ПЕВНТ) спостерігається лінійне зростання теплового опору від температури, але температура-інваріантний внесок у тепловий опір обумовлений наявністю дефектів вже не дорівнює нулю. Таким чином для композитів ПЕТВ та ПЕВНТ внесок у тепловий опір складається не лише з трьофононою взаємодії, але і структурне розсіяння на молекулярних дефектах.

Найкраще експериментальні дані були описані з точки зору теорії перколяції (протікання). Проаналізуємо експериментальні дані в рамках теорії перколяції (рів. 3).

Результати відповідності представлені на рис. 6. В точці  $v = v_c$  спостерігається розрив другого роду. Тому теоретичний опис здійснювали до та після порогу перколяції. Було встановлено, що поріг перколяції для системи ПЕТВ –  $v_c = 1,35$  мас. %, а для системи ПЕВНТ –  $v_c = 0,72$  мас. %. Для системи ПЕВНТ поріг перколяції виявився майже вдвічі менший за систему ПЕТВ – це пов'язано з різною геометрією та розмірами наповнювачів. Вуглецеві нанотрубки хоча і багатопшарові але вони є анізотричним наповнювачем і утворення провідного каналу відбуваються при значно меншій кількості наповнювача порівняно з ізометричним наповнювачем (технічний вуглець) у системі ПЕТВ.

Для визначення перед експоненціального показника  $k$  графіки залежності (рис. 6) були побудовані у логарифмічних координатах та здійснена лінійна апроксимація для даних до та після порогу перколяції. Для системи ПЕТВ  $k = 0,05$  до порогу перколяції,  $k' = 0,08$  після порогу перколяції. Для системи ПЕВНТ  $k = 0,05$  до порогу перколяції,  $k' = 0,11$  після порогу перколяції.



**Рис. 6** – Залежність коефіцієнта теплопровідності ПКМ від процентного вмісту: а) технічного вуглецю; б) вуглецевих нанотрубок. Пунктирна лінія – теорія перколяції

#### 4. ВИСНОВКИ

У результаті проведеної роботи було досліджено теплопровідність систем на основі ПЕ/ВНТ та ПЕ/ТВ та проаналізовано їх використовуючи теорію ефективного середовища та теорію перколяції. Після досліджень теплопровідності було визначено поріг перколяції для даних систем, який становить 1,35 % для системи ПЕТВ та 0,72 % для системи ПЕВНТ. Поріг перколяції для системи ПЕВНТ виявився майже вдвічі менший за поріг перколяції для системи ПЕТВ – це пов'язано з різною геометрією та розмірами наповнювачів. У ненаповненому ПЕ виявлено трьофоновий механізм теплопередачі. Встановлено, що у системах ПЕВНТ, завдяки відсутності прямого контакту, між нанотрубками утворюється непровідний полімерний шар (відстань між нанотрубками більша за дебаєвську). У результаті цього, тунелювання електронів між нанотрубками відсутнє, тобто при наповненнях вищих за перколяційне, переважає фоновий механізм теплопередачі. Наявність контактної опору пояснюється тим фактом, що теплопровідність системи ПЕВНТ після порогу перколяції значно нижча за теплопровідність нанотрубок у вільному стані. Також встановлено, що абсолютні значення теплопровідності після порогу перколяції для системи ПЕВНТ більше ніж для системи ПЕТВ.

### Analysis of the Thermal Conductivity of Polymer Nanocomposites Filled with Carbon Nanotubes and Carbon Black

R.V. Dinzhos<sup>1</sup>, N.M. Fialko<sup>2</sup>, E.A. Lysenkov<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Mykolayiv National University named after V.A. Sukhomlynskiy, 24, Nikolska Str., 54030 Nikolaev, Ukraine

<sup>2</sup> Institute of Engineering Thermophysics, NAS of Ukraine, 2a, Zhelyabov Str., 03057 Kyiv., Ukraine

Experimental results and theoretical studies of thermophysical characteristics crystalline polyethylene nanocomposites containing from 0.3 to 2.5 wt. % carbon black and nanocomposites containing from 0.2 to 1.5 wt. % carbon nanotubes is done in the article. The fundamentals of the effective medium theory and percolation theory and how they correlate with the experimental data is shown. The features of the structure's influence of polymer composites on their thermal properties is studied. A comparative analysis of the thermal conductivity of the compositions according to the geometry of the filler is done.

**Keywords:** Carbon nanotubes, Carbon black, Thermal conductivity, Percolation, Polymer nanocomposites

## Анализ теплопроводности полимерных нанокompозитов наполненных углеродными нанотрубками и техническим углеродом

Р.В. Динжос<sup>1</sup>, Н.М. Фіалко<sup>2</sup>, Э.А. Лысенков<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Николаевский национальный университет им. В.А. Сухомлинского, ул. Никольская, 24, 54030 Николаев, Украина

<sup>2</sup> Институт технической теплофизики НАН Украины, ул. Желябова, 2а, 03057 Киев, Украина

Представлены результаты экспериментальных и расчетных исследований теплофизических характеристик частично – кристаллического полиэтилена и нанокompозитов, содержащих от 0,3 до 2,5 мас. % технического углерода и нанокompозитов, содержащих от 0,2 до 1,5 мас. % углеродных нанотрубок. Представлены основы теории эффективной среды и теория перколяции и как они коррелируют с экспериментальными данными. Изучены особенности влияния структуры полимерных композитов на их теплофизические свойства. Сделан сравнительный анализ теплопроводности композиций в зависимости от геометрии наполнителя.

**Ключові слова:** Углеродные нанотрубки, Технический углерод, Коэффициент теплопроводности, перколяция, Полимерные нанокompозиты

### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Z. Han, A. Fina, *Prog. Polym. Sci.* **36**, 914 (2011).
2. H.O. Pierson, *Handbook of carbon, graphite, diamond and fullerenes: properties, processing and applications*. (New Jersey: Noyes Publications: 1993).
3. G. Wypych, *Handbook of fillers: physical properties of fillers and filled materials* (Toronto: ChemTec Publishing: 2000).
4. J.E. Fischer, *Carbon nanotubes: structure and properties. Carbon nanomaterials* (Ed. by Y. Gogotsi) (New York: Taylor and Francis Group: 2006).
5. S. Wolff, M.J. Wang, *Carbon black science & technology. 2nd ed* (New York: Marcel Dekker: 1993).
6. B.T. Kelly, *Physics of graphite* (Barking (UK): Applied Science Publishers: 1981).
7. А.В. Малезик, *Журнал прикладной химии.* **78**, 938 (2005).
8. Н.В. Лемеш, Э.А. Лысенков, Ю.П. Гомза, и др., *Украинский химический журнал* **76** № 5, 29 (2010).
9. A.L. Giovanni, *Int. J. Thermophys.* **29**, 664 (2008)
10. А.В. Лыков, *Теория теплопроводности* (М.: Высшая школа: 1967).
11. S.M. Marcus, R.L. Blaine, *Thermochim. Acta* **243**, 231 (1994).
12. M. Merzlyakov, C. Schick, *Thermochim. Acta* **377**, 183 (2001).
13. J.C. Maxwell, *Treatise on electricity and magnetism* (Oxford: 1873).
14. А.А. Тарер, *Физикохимия полимеров* (М.: Химия: 1978).
15. D. Stauffer, A. Aharony, *Introduction to percolation theory* (London: Taylor and Francis: 1994).
16. C.H. Liu, H. Huang, Y. Wu, S.S. Fan, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 4248 (2004).
17. M.J. Biercuk, M.C. Llaguno, M. Radosavljevic, J.K. Hyun, A.T. Johnson, J.E. Fischer, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 2767 (2002).
18. E.S. Choi, J.S. Brooks, D.L. Eaton, M.S. Al-Haik, M.Y. Hussaini, H. Garmestani, et al., *J. Appl. Phys.* **94**, 6034 (2003).
19. F. Du, C. Guthy, T. Kashiwagi, J.E. Fischer, K.I. Winey, *J. Polym. Sci. B: Polym. Phys.* **44**, 1513 (2006).
20. A. Yu, M.E. Itkis, E. Bekyarova, R.C. Haddon, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 133120 (2006).
21. M.B. Jakubinek, M.A. White, M. Mu, K.I. Winey, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 083105 (2010).
22. H. Huang, C. Liu, Y. Wu, S. Fan, *Adv. Mater.* **17**, 1652 (2005).
23. D.M. Bigg, *Adv. Polym. Sci.* **119**, 1 (1995).
24. H. Zhou, S. Zhang, M. Yang, *Compos. Sci. Technol.* **67**, 1035 (2007).
25. J. Zeng, R. Fu, S. Agathopoulos, S. Zhang, X. Song, H. He, *J. Electron. Pack.* **131**, 041006/1 (2009).
26. J. Wang, J.K. Carson, M.F. North, D.J. Cleland, *Int. J. Heat Mass Trans.* **51**, 2389 (2008).
27. В.С. Оскотский, И.А. Смирнов, *Дефекты в кристаллах и теплопроводность* (Л.: Наука: 1972).
28. R.B. Ross, D. Andersson, B. Sundqvist, *Reportson Prog. Phys.* **47**, 1347 (1984).
29. Dilek Kumlutas, Ismail H. Tayman, M. Turhan Coban, *Compos. Sci. Technol.* **63**, 113 (2003).