

纳米 SiO₂ 表面 KH550 接枝密度对改性纤维素绝缘纸力学性能与热稳定性的影响

杨路¹, 庞锴², 王栋², 孙鹏², 邱秦攀¹, 唐超¹

(1. 西南大学 工程技术学院, 重庆 400700;

2. 国网河南省电力公司电力科学研究院, 河南 郑州 450000)

摘要:为提升纤维素绝缘纸的力学性能与热稳定性,利用KH550对纳米SiO₂进行表面改性,将其掺杂到纤维素绝缘纸中,通过分子模拟建立不同接枝密度的纳米SiO₂/纤维素复合模型,并对各模型的力学性能、均方位移、内聚能密度、溶解度参数和径向分布函数进行计算和分析。结果表明:KH550接枝密度为12.5%的纳米SiO₂/纤维素复合模型抗形变能力最佳,并具有较大的内聚能密度和溶解度参数,改性效果最佳。

关键词:硅烷偶联剂KH550;纤维素绝缘纸;纳米SiO₂;接枝密度

中图分类号:TM 文献标志码:A 文章编号:1009-9239(2021)01-0025-06

DOI:10.16790/j.cnki.1009-9239.im.2021.01.005

Influence of KH550 Grafting Density on Surface of Nano-SiO₂ on Mechanical Properties and Thermal Stability of Modified Cellulose Insulating Paper

YANG Lu¹, PANG Kai², WANG Dong², SUN Peng², QIU Qinpan¹, TANG Chao¹

(1. College of Engineering and Technology, Southwest University, Chongqing 400700, China;

2. Electric Power Research Institute of State Grid Henan Electric Power Company, Zhengzhou 450000, China)

Abstract: In order to improve the mechanical properties and thermal stability of cellulose insulating paper, the nano-SiO₂, surface modified by KH550, was doped into cellulose insulating paper. The nano-SiO₂/cellulose composite models with different grafting density were established through molecular simulation, and their mechanical properties, mean square displacement, cohesive energy density, solubility parameter, and radial distribution function were calculated and analyzed. The results show that when the grafting density of KH550 is 12.5%, the nano-SiO₂/cellulose composite system has optimum deformation resistance, large cohesive energy density and solubility parameter.

Key words: silane coupling agent KH550; cellulose insulating paper; nano-SiO₂; grafting density

0 引言

绝缘纸的性能是影响电力变压器性能的重要因素,为提升绝缘纸性能,利用新兴的纳米技术对

绝缘纸纤维素进行改性是变压器绝缘研究的热点。

目前,纳米粒子修饰纤维素已有很多成熟的研究,如张松等^[1]利用纳米 Al₂O₃ 对纤维素绝缘纸进行改性,发现改性后的绝缘纸具有优异的强度与韧性;GAO Fei 等^[2]利用纳米 Al₂O₃ 改善了纤维素绝缘纸的电性能;HAO Jian 等^[3]利用纳米 PTFE 对绝缘纸的纤维素覆膜进行改性以提高其击穿电压和改善其疏水性;LIAO Ruijin 等^[4]利用 TiO₂ 对油浸绝缘纸纤维素进行改性,提升了纤维素绝缘纸的拉伸强度、电

收稿日期:2020-04-27 修回日期:2020-06-30

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51977179);中央高校基本科研业务费专项资金资助项目(XDJK2020D018)

作者简介:杨路(1996-),女(汉族),山西长治人,硕士生,研究方向为变压器绝缘纸的性能与改性;通信作者:唐超(1981-),男(汉族),四川自贡人,教授,博士,研究方向为电气设备在线监测、故障诊断及状态评价技术。

气强度和介电性能; TANG Chao 等^[5]利用纳米 SiO₂ 粒子进行改性, 提高了纤维素绝缘纸的拉伸强度和玻璃化转变温度。可见, 利用纳米粒子进行改性可以有效改善纤维素绝缘纸的性能。

一些纳米粒子表面含有羟基, 易与水分子发生反应而团聚, 使其对材料性能的改善作用无法充分发挥, 因此通常利用偶联剂对纳米粒子表面进行处理, 其中硅烷偶联剂能对含羟基的纳米粒子进行有效的表面改性^[6-7]。朱子沛等^[8]利用硅烷偶联剂改性纳米 Al₂O₃, 减少了纳米粒子的团聚现象, 提高了材料的力学性能, 优化了杂交膜的形貌。V PURCAR 等^[9]利用不同的硅烷偶联剂通过溶胶-凝胶法合成了以纳米氧化锌为基础的杂化纳米复合材料, 该复合材料的热稳定性得到了提升, 并且表面接触角增大, 可用于防腐蚀和防冰涂料。LI Dongna 等^[10]用 KH570 接枝纳米 SiO₂, 改性后的材料分散更加均匀, 最大热分解温度和结晶度提高。本课题组^[11-12]选用 KH550 与 KH792 对纳米 SiO₂ 进行了改性, 改性后的材料性能较佳, 其中 KH550 在硅烷偶联剂中由于价格相对低廉而受到广泛应用。

随着计算机技术的发展, 分子模拟技术已经广泛应用于分子微观机理的推算和研究^[13]。WEI Qinghua 等^[14]采用分子动力学方法研究了纳米 SiO₂ 粒子对聚乙烯醇/聚乙烯吡咯烷酮共混体系性能的影响, 揭示了纳米 SiO₂ 粒子在共混体系中的相互作用机理; M MOHAMMADI 等^[15]采用分子动力学模拟方法研究了氧化铝纳米颗粒对聚甲基丙烯酸甲酯(is-PMMA) 聚合物热扩散性能的影响; K BYUNGJO 等^[16]采用分子动力学模拟方法研究了不同交联度的环氧树脂(EP) 掺杂不同尺寸纳米 SiO₂ 后的力学性能和热稳定性。

综上, 目前纳米 SiO₂ 的掺杂^[17-18]和 KH550^[19-21] 的接枝对纤维素绝缘纸的改性效果得到了广泛的认可, 但是对硅烷偶联剂修饰纳米 SiO₂ 提升纤维素绝缘纸的微观机理并没有得到很好的解释。

本研究基于分子动力学建立不同接枝密度的硅烷偶联剂接枝的纳米 SiO₂/纤维素模型, 并对模型的力学性能、径向分布函数(RDF)、内聚能密度(CED)、溶解度参数(SP)和均方位移(MSD)进行计算和分析, 研究硅烷偶联剂在纳米 SiO₂ 改性纤维素绝缘纸的过程机理。

1 模型搭建及参数设置

在 Materials Studio(MS) 软件的 Amorphous cell

(AC) 模块中分别建立纤维素聚合度(DP)为 10、初始密度为 0.6 g/cm³ 的纤维素模型, 以及 KH550 接枝密度^[22]分别为 0、3.12%、9.37%、12.5%、15.6%、18.75% 的纳米 SiO₂/纤维素复合模型^[23], 分别记为 Pure、3%-SiO₂、9%-SiO₂、12%-SiO₂、15%-SiO₂、18%-SiO₂。在 MS 软件中先建立纤维素、硅烷偶联剂(KH550)以及纳米 SiO₂ 的模型, 利用图 1 所示的水解反应在已羟基化的纳米 SiO₂ 表面接枝硅烷偶联剂, 再在 Amorphous cell 模块中使用 packing 方法构建纤维素与改性纳米 SiO₂ 的复合模型。

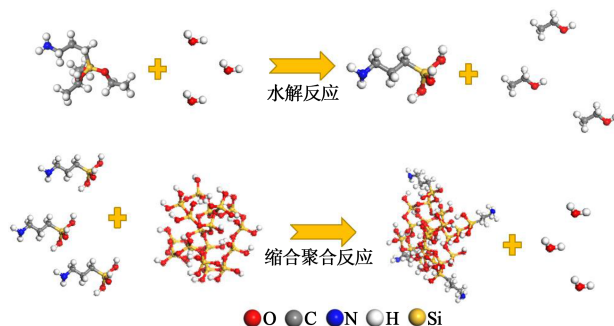


图1 纳米 SiO₂ 改性原理图

Fig.1 Schematic diagram of nano-SiO₂ modification

对模型进行几何优化, 利用 Forcite 模块进行步长为 1 fs、总步数为 5 000 步的能量最小化计算, 再进行温度为 300~900 K 的 5 个循环的退火处理, 选择能量最小的结构模型再次进行 5 000 步的结构优化和能量最小化计算。接着对模型进行分子动力学模拟: 先后进行 300 ps、500 ps 的 NPT 模拟计算(压力为 1 atm)。在能量优化以及分子动力学模拟过程中, 采用 Compass 力场^[24]、Nose 控温方法^[25]和 Ewald 静电方法, Vander Waals 作用采用 AtomBased 方法, 压强控制采用 Berendsen 方法, 模型如图 2 所示。

2 分析和讨论

2.1 力学性能

纤维素体系沿着 x-x、y-y、z-z、y-z、x-z 和 x-y 平面产生剪切变形, 其应力应变关系满足胡克定律, 如式(1)~(2)所示。

$$\sigma_i = C_{ij} \varepsilon_j \quad (1)$$

$$\begin{bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & C_{15} & C_{16} \\ C_{21} & C_{22} & C_{23} & C_{24} & C_{25} & C_{26} \\ C_{31} & C_{32} & C_{33} & C_{34} & C_{35} & C_{36} \\ C_{41} & C_{42} & C_{43} & C_{44} & C_{45} & C_{46} \\ C_{51} & C_{52} & C_{53} & C_{54} & C_{55} & C_{56} \\ C_{61} & C_{62} & C_{63} & C_{64} & C_{65} & C_{66} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{bmatrix} \quad (2)$$

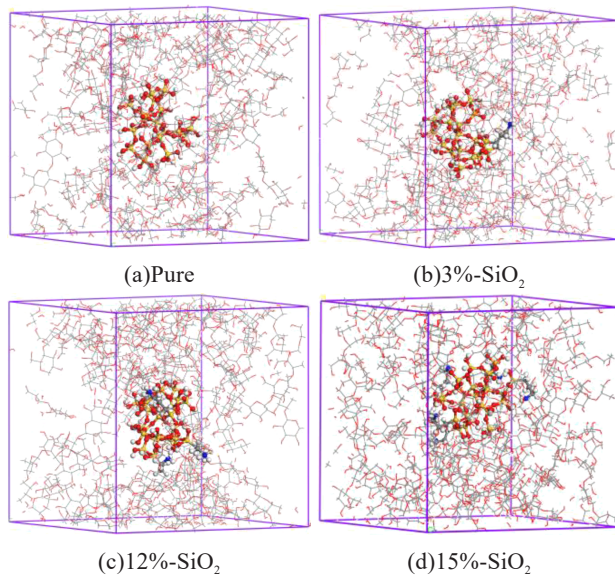


图2 不同接枝密度的纳米 SiO₂/纤维素模型

Fig.2 Nano-SiO₂/cellulose models with different grafting density

式(1)~(2)中: σ_i 为应力; C_{ij} 为计算所得的弹性刚度系数矩阵; ϵ_j 为应变张量^[26]。

复合材料的弹性模量 E 、剪切模量 G 、体积模量

K 和泊松比 ν 分别可以用弹性常量 λ 和 μ 表示,如式(3)~(6)所示。

$$E = \mu \cdot \frac{3\lambda + 2\mu}{\lambda + \mu} \quad (3)$$

$$G = \mu \quad (4)$$

$$K = \lambda + \frac{2}{3}\mu \quad (5)$$

$$\nu = \frac{\lambda}{2(\lambda + \mu)} \quad (6)$$

表1给出了6个模型在343 K下的体积模量 K 、剪切模量 G 、泊松比 ν 、弹性模量 E 、 K/G 和柯西压值 (C_{12} - C_{44})。体积模量 K 可以反映材料的宏观力学特性,是体现物体应变和平均应力关系的物理量;剪切模量 G 又称切变模量,是剪切应力与应变的比值;泊松比 ν 也叫横向变形系数,是反映材料横向变形的弹性系数;弹性模量 E 又称杨氏模量,表征材料抗形变的能力,其值越大,材料抗形变的能力越强; K/G 值是体积模量 K 与剪切模量 G 的比值,用于评价材料的韧性;柯西压是衡量材料延展性的参数,其值越大表示材料延展性越好,其值越小表示材料越脆。

表1 各模型在343 K下的力学性能参数

Tab.1 Mechanical property parameters of each model at 343 K

| 模型 | 体积模量(K) | 剪切模量(G) | 泊松比(ν) | 弹性模量(E) | K/G | 柯西压(C_{12} - C_{44}) |
|----------------------|-------------|-------------|--------------|-------------|---------|----------------------------|
| Pure | 7.073 0 | 4.459 2 | 0.239 5 | 8.374 6 | 1.518 6 | -1.200 3 |
| 3%-SiO ₂ | 7.064 4 | 4.265 6 | 0.248 7 | 8.070 1 | 1.656 1 | -0.321 5 |
| 9%-SiO ₂ | 8.384 5 | 5.132 6 | 0.245 8 | 9.688 0 | 1.633 6 | -1.061 4 |
| 12%-SiO ₂ | 9.865 2 | 5.522 9 | 0.264 1 | 10.577 9 | 1.786 2 | -0.120 6 |
| 15%-SiO ₂ | 8.664 5 | 4.687 3 | 0.243 9 | 10.242 6 | 1.848 5 | -1.117 6 |
| 18%-SiO ₂ | 8.438 8 | 4.551 5 | 0.241 4 | 9.573 8 | 1.854 0 | -1.081 6 |

从表1可以看出,经KH550改性后,接枝KH550的模型在各个力学参数上基本都有所改善,其中3%-SiO₂的脆性提升最大,12%-SiO₂的力学性能提升最大。这是由于在硅烷偶联剂接枝密度低于12.5%时,随着接枝密度的增加,分子间的范德华力增大,分子间的纠缠效应也增强,模型的力学性能得到提升。当接枝密度超过12.5%以后,纳米SiO₂表面的硅烷偶联剂之间的空间距离变小,纤维素链难以进入到硅烷偶联剂的空隙中,微观力学互锁效应减弱,导致其力学性能下降,这与文献[27]得到的

结论接近。

2.2 均方位移

为了探究KH550改性纳米SiO₂对纤维素链运动能力的影响,用均方位移(MSD)来表征纤维素链热运动的位移,均方位移的值越大,物体热运动越剧烈。均方位移^[28-31]的值可以通过式(7)计算。

$$MSD = \left\langle |r_i(t) - r_i(0)|^2 \right\rangle \quad (7)$$

式(7)中: $r_i(t)$ 为 t 时刻 i 分子或原子的位置; $r_i(0)$ 表示0时刻 i 分子或原子的位置。

图3为各模型在343 K下纤维素链的均方位

移。从图3可以看出, 未经KH550改性的纤维素模型均方位移变化范围为0~10 Å², 3%-SiO₂、9%-SiO₂、12%-SiO₂、15%-SiO₂、18%-SiO₂的均方位移变化范围分别为0~5.1 Å²、0~4.6 Å²、0~3.79 Å²、0~6.41 Å²、0~8.9 Å²。改性模型的均方位移均小于未改性模型, 这是因为KH550接枝纳米 SiO₂ 后与纤维素链形成了更多的氢键, 减缓了纤维素链的热运动。12%-SiO₂ 纤维素链的均方位移变化范围最小, 而15%-SiO₂ 和18%-SiO₂ 的均方位移相对于12%-SiO₂ 有所上升, 这是因为在高接枝密度的情况下, 纤维素链较难进入到硅烷偶联剂之间的空隙, 纳米 SiO₂ 对纤维素链的束缚力减弱。

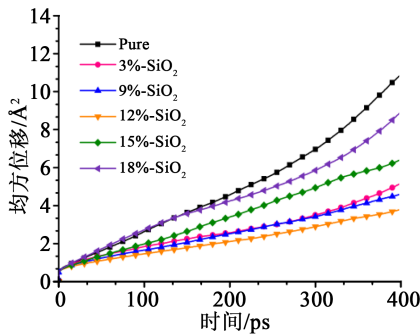


图3 模型中纤维素链的均方位移
Fig.3 Mean square displacement of cellulose chains in the model

2.3 内聚能密度和溶解度参数

高分子聚合物之间的作用力通常用内聚能或者内聚能密度^[32-33]表示, 主要反映基团间的相互作用。内聚能(CED)通常指一个分子体系中所有分子分离到无限远处所需要的平均能量, 分子间作用力越大, 体系的内聚能就越大, 其计算如式(8)所示。

$$CED = \frac{E_{cc}}{V} = \frac{\langle E_{total} - E_{intra} \rangle}{V} = \frac{\langle E_{inter} \rangle}{V} \quad (8)$$

式(8)中: E_{cc} 表示体系的内聚能; E_{total} 表示体系的总能量; E_{intra} 表示分子内的能量; E_{inter} 表示分子间的能量; V 表示体系的体积。

溶解度参数(SP)可用于表征体系内分子间相互作用强度的大小, 现已作为物质间相容性判断的一个重要参数, 其计算如式(9)所示。

$$SP = \sqrt{CED} \quad (9)$$

图4为各模型的内聚能密度和溶解度参数。由图4可以看出, 模型内聚能密度为450~700 J/cm³, 这代表着模型中分子链有极强的极性基团或者分

子间能形成氢键。接枝KH550的模型比未接枝模型的内聚能密度均有上升, 说明在纳米 SiO₂ 表面接枝KH550与纤维素链之间形成了更多的氢键, 增大了纤维素链与纳米 SiO₂ 的结合能。CED和SP值均随着接枝密度的增加先增大再减小, 这是因为在接枝密度较大时, KH550在纳米 SiO₂ 表面互相靠近, 形成半封闭的空间结构, 使纤维素分子链不易渗透到纳米 SiO₂ 表面与极性较强的基团形成氢键, 导致体系的结合能降低, 相容性变差。

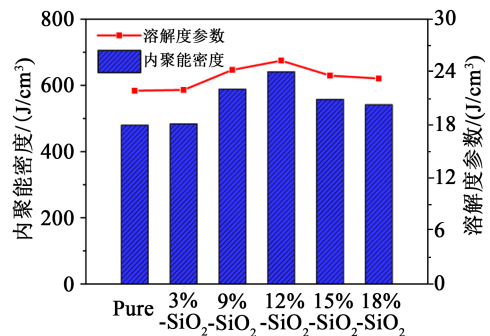


图4 内聚能密度与溶解度参数
Fig.4 Cohesive energy density and solubility parameters

2.4 径向分布函数

两组分之间的相互作用可以通过径向分布函数来反映, 径向分布函数^[34-35]表示在完全随机分布的体系中, 基团A的 r 距离内出现基团B的概率密度($g_{AB}(r)$), 可表示为式(10)。

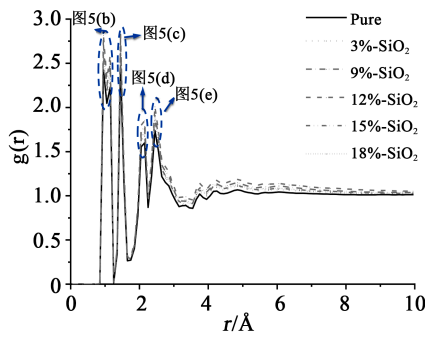
$$g_{AB}(r) = \frac{\langle \sum_{i \neq j} \delta(r - |r_{Ai} - r_{Bj}|) \rangle}{(N_A N_B - N_{AB}) 4\pi r^2 dr} \quad (10)$$

式(10)中: i 和 j 表示基团A和基团B中的第 i 和第 j 个原子; N_{AB} 表示基团A和基团B的总原子数。

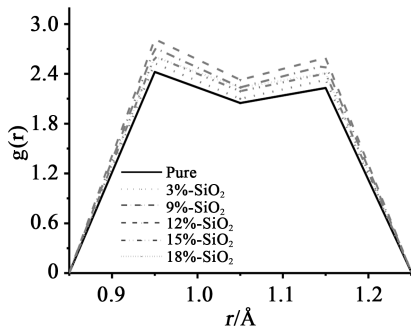
通常可以从径向分布函数(RDF)曲线中峰的位置判断两种基团之间的距离, 从峰值判断两种原子作用的强度。图5为不同模型在343 K下的RDF曲线及其在0~3 Å 峰值的放大图。从图5可以看出, 这几种模型的RDF曲线相似, 在短距离内为0, 在5 Å 以上趋于稳定。一般在3.5 Å 以下的峰值主要体现化学键和氢键的强弱, 而3.5 Å 以上的峰值对应范德华力和静电力的强弱。

图5中, 第一和第二个峰出现在0.8~1.2 Å, 这是氢和其他原子之间的化学键造成的, 其中以氢键为主要因素。6个模型中12%-SiO₂ 在第一个和第二个峰的峰值最高, 分别为2.8和2.6。第三个峰出现在1.3~1.7 Å, 这是C原子与其相连的原子形成的

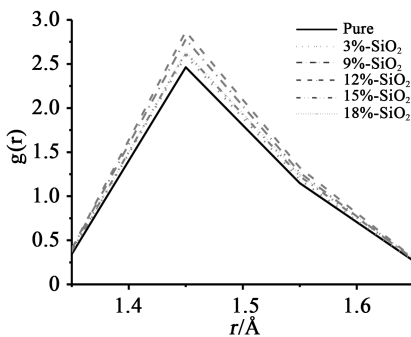
键(例如C-O、C-N键)造成的。第四个峰和第五个峰出现在1.9~2.3 Å和2.4~2.6 Å,这是体系中相隔两个键的化学键(例如C-C-C和C-C-H)和3个原子以上所构成的化学键生成的。在本研究构造的模型中,经过KH550改性的模型RDF峰值均比未改性的模型要大,这表明在改性后的体系中形成了更



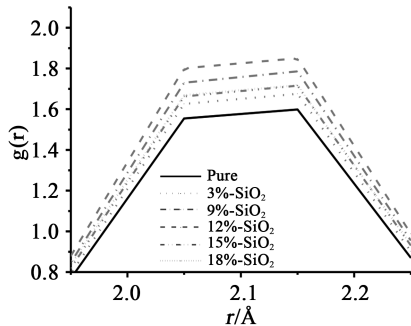
(a)RDF曲线



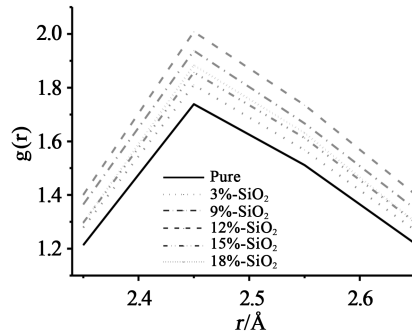
(b)第一个峰和第二峰放大图



(c)第三个峰放大图



(d)第四个峰放大图



(e)第五个峰放大图

图5 各模型的RDF曲线及放大图

Fig.5 RDF curves of each model and the enlarged drawing

多的化学键与氢键,分子间具有更强的相互作用。其中12%-SiO₂由于模型结构最为优异而拥有最多的氢键,所以峰值也最高。当接枝密度较大时,峰值随着接枝密度的增大反而下降,也可以印证之前接枝密度过大不利于形成更优异的体系结构进而导致材料性能下降的结论。

3 结论

(1)相对于未接枝KH550的纳米SiO₂/纤维素体系,接枝KH550后的纳米SiO₂能提升纳米SiO₂/纤维素体系的力学性能,减缓体系中纤维素链运动,增大分子间的相互作用,提高相容性,进而有效提升纳米SiO₂/纤维素体系的热稳定性。

(2)对于不同接枝密度的KH550改性纳米SiO₂/纤维素体系,KH550接枝密度为12.5%时,改性纳米SiO₂/纤维素体系的力学性能、RDF、内聚能密度、溶解度参数和MSD相对最佳,其中MSD降低了约6 Å²,内聚能密度提高了33%,溶解度参数提高了15%,且表面结构更为优异。因此对于接枝KH550的纳米SiO₂/纤维素体系而言,选择12.5%的接枝密度能获得最佳的改性效果。

参考文献:

- [1] 张松,唐超,CHEN G,等. 纳米Al₂O₃对变压器绝缘纸纤维素热稳定性的影响及其机理分析[J]. 中国科学:技术科学,2015,45(11):1167-1179.
- [2] GAO Fei, XIANG Min, LIAO Ruijin, et al. In the experimental investigation on space charge distribution of cellulose insulation paper modified with alumina nano particles[C]//International Conference on Condition Monitoring and Diagnosis. Xi'an, China: IEEE,2016.
- [3] HAO Jian, LIU Cong, LI Yangqing, et al. Preparation nanostructure polytetrafluoroethylene (PTFE) functional film on the cellulose insulation polymer and its effect on the breakdown voltage

- and hydrophobicity properties[J]. *Materials*,2018,11(5):851-860.
- [4] LIAO Ruijin, LÜ Cheng, YANG Lijun, et al. The insulation properties of oil-impregnated insulation paper reinforced with nano-TiO₂[J]. *Journal of Nanomaterials*,2013,2013:373959.
- [5] TANG Chao, ZHANG Song, WANG Xiaobo, et al. Enhanced mechanical properties and thermal stability of cellulose insulation paper achieved by doping with melamine-grafted nano SiO₂[J]. *Cellulose*,2018,25:3619-3633.
- [6] CHEVIGNY C, DALMAS F, COLA E, et al. Polymer-grafted-nanoparticles nanocomposites: Dispersion, grafted chain conformation, and rheological behavior[J]. *Macromolecules*,2011,44(1):122-133.
- [7] KIM Y J, HA S W, JEON S M, et al. Fabrication of triacetylcellulose-SiO₂ nanocomposites by surface modification of silica nanoparticles[J]. *Langmuir*,2010,26(10):7555-7560.
- [8] 朱子沛,汤旭,何其,等. 基于硅烷偶联剂表面改性制备 Al₂O₃/PVDF 杂化膜[J]. *化工进展*,2017,36(2):652-657.
- [9] PURCAR V, SOMOGHI R, NITU S G, et al. The effect of different coupling agents on nano-ZnO materials obtained via the sol-gel process[J]. *Nanomaterials*,2017,7(12):439.
- [10] LI Dongna, FU Jirui, MA Xiaojun. Improvement in thermal, mechanical, and barrier properties of biocomposite of poly (3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyhexanoate)/modified nano SiO₂[J]. *Polymer Composites*,2020,41(1):381-390.
- [11] 王小波. 硅烷偶联剂修饰纳米 SiO₂ 对其改性纤维素绝缘纸性能的微观机理研究[D]. 重庆:西南大学,2019.
- [12] WANG Lihan, TANG Chao, WANG Xiaobo, et al. Molecular dynamics simulation on the thermodynamic properties of insulating paper cellulose modified by silane coupling agent grafted nano-SiO₂[J]. *AIP Advances*,2019,9(12):125134.
- [13] TANG C, ZHENG W, WANG L H, et al. Thermal stability of polyphenylsilsesquioxane-modified meta-aramid insulation paper[J]. *High Voltage*,2020,5(3):264-269.
- [14] WEI Qinghua, ZHANG Yingfeng, WANG Yanen, et al. A molecular dynamic simulation method to elucidate the interaction mechanism of nano-SiO₂ in polymer blends[J]. *Journal of Materials Science*,2017,52(2):12889-12901.
- [15] MOHAMMADI M, DAVOODI J. The effect of alumina nanoparticles on the thermal properties of PMMA: A molecular dynamics simulation[J]. *Molecular Simulation*, 2018, 44(16):1304-1311.
- [16] BYUNGJO K, JOONMYUNG C, SEUNGHWA Y, et al. Influence of crosslink density on the interfacial characteristics of epoxy nano composites[J]. *Polymer*,2015,60:186-197.
- [17] 胡婷,柳欢欢,周竹君,等. 纳米 SiO₂ 复合改性绝缘纸的制备[J]. *绝缘材料*,2017,50(6):22-26.
- [18] PONYRKO S, KOBERA L, BRUS J, et al. Epoxy-silica hybrids by nonaqueous sol-gel process[J]. *Polymer*, 2013, 54(23): 6271-6282.
- [19] LI Yingjun, CHEN Hua, WU Jie, et al. Preparation and characterization of APTES modified magnetic MMT capable of using as anisotropic nano particles[J]. *Applied Surface Science*,2018, 447:393-400.
- [20] YUSMANIAR, PURWANTO A, PUTRI E A, et al. Adsorption of Pb(II) using silica gel composite from rice husk ash modified 3-aminopropyltriethoxysilane (APTES)-activated carbon from coconut shell[J]. *AIP Conference Proceedings*, 2017, 1823(1): 020034.
- [21] WU Minghong, GU Lanbing, WANG Qiong, et al. Interfacial assembly of robust TiO₂ nano sheets onto silica-modified reduced graphene oxide for high-efficient degradation of organic dyes[J]. *Chemnanomat*,2018,4(4):387-393.
- [22] WANG Zhikun, LÜ Qiang, CHEN Shenghui, et al. Effect of interfacial bonding on interphase properties in SiO₂/epoxy nano composite: A molecular dynamics simulation study[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*,2016,8(11):7499-7508.
- [23] ZHENG Wei, TANG Chao, XIE Jufang, et al. Micro-scale effects of nano-SiO₂ modification with silane coupling agents on the cellulose/nano-SiO₂ interface[J]. *Nanotechnology*, 2019, 30(44):445701.
- [24] THEODOROU D N, SUTER U W. Detailed molecular structure of a vinyl polymer glass[J]. *Macromolecules*, 1985, 18(7):1467-1478.
- [25] NOSE S. Constant temperature molecular dynamics methods[J]. *Progress of Theoretical Physics Supplement*,1991(103):1-46.
- [26] 彭发东,于海川,徐晓刚,等. 变压器用耐高温绝缘纸性能对比分析[J]. *绝缘材料*,2018,51(12):30-35.
- [27] 朱耿增,李文静,王晓明,等. KH550 改性微米二氧化硅的条件优化[J]. *中国粉体技术*,2020,26(147):39-43.
- [28] YI Zheng, MIAO Yinglong, BAUDRY J, et al. Derivation of mean-square displacements for protein dynamics from elastic incoherent neutron scattering[J]. *The Journal of Physical Chemistry B*,2012,116(16):5028-5036.
- [29] SABZYAN H, TAVANGAR Z. Characterization of the flow of the CO/CO₂ gases through carbon nanotube junctions using molecular dynamic simulations[J]. *Chemical Physics*,2009,362(3):120-129.
- [30] OKADA O, FURUYA H. Molecular dynamics simulation of cis-1,4-polybutadiene. I. comparison with experimental data for static and dynamic properties[J]. *Polymer*,2002,43(3):971-976.
- [31] LI Qibin, PENG Xianghe, PENG Tiefeng, et al. Molecular dynamics simulation of Cu/Au thin films under temperature gradient[J]. *Applied Surface Science*,2015,357:1823-1829.
- [32] LI Chunyu, STRACHAN A. Cohesive energy density and solubility parameter evolution during the curing of thermoset[J]. *Polymer*,2017,135:162-170.
- [33] CHANG K S, CHUNG Y C, YANG T H, et al. Free volume and alcohol transport properties of PDMS membranes: Insights of nano structure and interfacial affinity from molecular modeling [J]. *Journal of Membrane Science*,2012,417-418:119-130.
- [34] WILHELM J, FREY E. Radial distribution function of semiflexible polymers[J]. *Physical Review Letters*, 1996, 77(12): 2581-2584.
- [35] TEMKIN R J. An analysis of the radial distribution function of siox[J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*,1975,17(2):215-230.