

## Περίληψη

Κύριος σκοπός της εργασίας είναι η δημιουργία και μελέτη ενός δυαδικού ή διδιάσπαρτου (bimodal) ελαστομερικού δικτύου πολυαιθυλενίου μέσω μοριακών προσομοιώσεων. Τα δυαδικά δίκτυα εμφανίζουν βελτιωμένες ιδιότητες σε σχέση με δίκτυα που χαρακτηρίζονται από ένα συγκεκριμένο μήκος αλυσίδων. Για την υπολογιστική παραγωγή δικτύων έχουν αναπτυχθεί ορισμένες τεχνικές, όμως έχουν εφαρμοσθεί κυρίως για τη δημιουργία ρητινών και δεν υπάρχει τυποποιημένη μέθοδος για την παραγωγή ελαστομερικών δυαδικών δικτύων μέσω ατομιστικού μοντέλου. Τα ελαστομερή αποτελούνται από πολυμερικές αλυσίδες με μεγάλο μέγεθος που χαρακτηρίζονται από τεράστιους χρόνους χαλάρωσης για να προσομοιωθούν με χρήση μοριακής δυναμική. Για τη δημιουργία του δικτύου στην εργασία αυτή αξιοποιείται ένα εξισορροπημένο πολυδιάσπαρτο τήγμα πολυαιθυλενίου. Οι αλυσίδες του αρχικού δικτύου κόβονται σε υποαλυσίδες ώστε να εμφανίσουν την επιθυμητή κατανομή μηκών και στη συνέχεια σταυροδεσμεύονται τα άκρα των υποαλυσίδων μεταξύ τους προς το σχηματισμό ενός τέλει δικτύου. Για τη κοπή αναπτύχθηκε ένας ευρετικός αλγόριθμος που λαμβάνει υπόψη ορισμένα ενδεχόμενα κοπής και επιλέγει το βέλτιστο. Για τη σταυροδέσμευση αναπτύχθηκε ένας αλγόριθμος προσομοιωμένης απόπτωσης που στοχεύει να επιλέξει άκρα αλυσίδων που είναι όσο το δυνατόν πλησιέστερα προκειμένου να σταυροδεσμευθούν. Το τελικό δίκτυο που παράγεται εμφανίζει μια δικόρυφη κατανομή μηκών αλυσίδων, ωστόσο οι πολυμερικές υποαλυσίδες στη δομή του υλικού είναι προεκτεταμένες και ως εκ τούτου το δίκτυο αποδεικνύεται ιδιαίτερα δύσκαμπτο με μέτρο ελαστικότητας 58.27 MPa. Η τιμή του μέτρου ελαστικότητας είναι πολύ μεγάλη για να χαρακτηριστεί το υλικό ως ελαστομερές. Οι υποαλυσίδες επεκτάθηκαν έντονα κατά το στάδιο εξομάλυνσης των σταυροδεσμών με ενεργειακή ελαχιστοποίηση.

## **Abstract**

The main aim of this thesis is the creation and study of a bimodal elastomeric polyethylene network through molecular simulations. Bimodal networks show improved properties in comparison to networks characterized by a particular chain length (unimodal). Some techniques have been developed for the computational generation of networks, but they have been mainly applied for the creation of resins and there is no standardized method for producing elastomeric bimodal networks using an atomistic model. The elastomers consist of large size polymer chains which are characterized by huge relaxation times, too long to simulate using molecular dynamics. For the creation of the network, an equilibrated polydisperse polyethylene melt is utilized as a starting point. The chains of the original network are cut in order to develop the desired length distribution of subchains and then the ends of subchains are crosslinked together to form a perfect network. For cutting, a heuristic algorithm has been developed that takes into account some potential virtual cuts and chooses the optimum one. For the crosslinking, a simulated annealing algorithm has been developed that aims to select chain-ends that are as close together as possible. The final network that was produced is characterized by a bimodal chain length distribution. However, the polymeric sub-chains in the structure of the material are elongated and have proven particularly stiff, resulting in a modulus of elasticity of 58.27 MPa. The value of the modulus of elasticity is too high for the material to be described as an elastomer. The sub-chains expanded strongly during the smoothing of the crosslinks with energy minimization.