# 红外加热缠绕成型工艺参数对 CF/PEEK 复合材料层间剪切性能的影响

单　毫，陈　宇，李俊杰，姚　钱

（华东理工大学特种功能高分子材料及相关技术教育部重点实验室，上海　200237）

**摘要：**为获得层间粘结性能优异的连续碳纤维增强聚醚醚酮复合材料（CF/PEEK）缠绕成型制品，以粉末浸渍法制备的 CF/PEEK 单向带为原料，采用自制的高功率红外加热热塑性复合材料缠绕成型设备，进行缠绕成型工艺的研究。以层间剪切强度（ILSS）作为评价缠绕制品性能的主要依据，分别研究了缠绕成型过程中的送料张力、下压辊压力、缠绕速率、加热温度、预热时间和冷却速率等关键工艺参数对 CF/PEEK 环制品性能的影响。实验结果表明，成型温度为 410 ℃，预热为 40 min，送料张力为 8 kg，下压辊气缸压力为 0.30 MPa，芯模转速为 6 r/min，缓慢冷却条件下制得的缠绕制品性能最优，层间剪切强度达到（82.29±1.27）MPa，并据此制备出了 CF/PEEK 缠绕管道。

**关键词：**热塑性复合材料；聚醚醚酮；红外加热；缠绕成型；层间剪切强度

**中图分类号：**TB332　　**文献标识码：**A　　**文章编号：**2096-8000(2020)01-0039-08

缠绕成型是制备高性能复合材料的重要成型工艺之一，尤其是在制备各种高压容器、贮罐、耐腐蚀管道、高压管道等方面具有无可替代的优势，具有生产效率高、制造成本低、可设计性强、质量高度可重复等特点[1]。连续碳纤维增强聚醚醚酮复合材料（CF/PEEK）是性能最为优异的材料之一，具备出色的耐高温、耐腐蚀性能和优异的力学性能，使得其在航空航天、武器装备和能源工业等领域发挥着特殊的作用。国外对该材料的研究已经较为深入，并在军民航空器中得到应用[2]。但是 CF/PEEK 预浸料在国内尚未实现工业化生产，导致我国在 CF/PEEK 复合材料加工成型方面的研究严重受限，因此积极开展该方面的研究具有重要意义。

目前，CF/PEEK 缠绕成型可以采用的加热方式包括激光、热气炬、火焰、红外、微波、超声加热等[3]。激光加热能量密度高、响应速度快、温度控制精准、加工速度快，受到研究者青睐。Stokes-Griffin 等[4,5]研究了激光加热自动铺放成型中加工温度和铺放速率对 CF/PEEK 短梁剪切强度的影响，激光加热温度达到 600 ℃时，铺放速度可以达到 400 mm/s，层间剪切强度达到 94.8 MPa。Comer 等[6]使用激光辅助自动铺放成型和热压罐工艺制备了 CF/PEEK 层压板样品，对比发现除层间断裂韧性外，自动铺放成型制品力学性能均低于热压制品。

激光加热虽然有诸多优点，但是其设备昂贵，使用成本高昂，因此开发低成本的成型技术具有现实意义。Khan 等[7]研究了铺放成型中热气炬气体流量、基板加热温度、铺设速度和固结压力以及树脂的热稳定性对 CF/PEEK 层间粘结性能的影响，确定了最佳工艺参数。唐邦铭[8]同时对 $H_2-O_2$ 火焰加热和芯模加热 CF/PEEK 缠绕成型工艺进行了对比研究，发现采用芯模加热时可缠绕厚度有限，火焰加热时厚度不受影响。王鑫等[9]研究了超声原位固结 CF/PEEK 铺放成型过程，制得的层间剪切强度与热压试样相比存在较大差距，表明超声加热效率存在一定的局限性。Li 等[10]研究了在线浸渍电弧加热原位固结缠绕成型制备碳纤维增强 PPESK 环形制品，实现了良好的层间粘结。微波加热[11,12]和氙气闪光灯[13]加热也逐渐成为研究热点。

红外加热是另外一种低成本的加热方式，尤其是对于碳基复合材料而言，红外线能量几乎能被完全吸收。但是由于红外加热不能够提供高度聚焦的能量，导致不需加热的区域也被加热，因此红外加热经常作为预热器[14,15]，在部分研究中也被用作主要热源[16-18]。在 Yousefpour 等[19]的研究中，CF/PEEK 预浸带的预热和缠绕固结供热均使用了红外加热。红外加热缠绕成型过程中的传热过程较为复杂，涉及多物理和多尺度性质以及强耦合和复杂的几何形

收稿日期：2019-04-12

本文作者还有周晓东*。

基金项目：装备预研教育部联合基金（614A02022209）；上海航天科技创新基金（SAST2016108）

作者简介：单毫（1991-），男，硕士研究生，主要从事碳纤维增强热塑性复合材料成型技术方面的研究。

通讯作者：周晓东（1969-），男，博士生导师，教授，主要从事热塑性聚合物复合材料的制备与成型技术、多相多组分聚合物材料界面设计与控制、生物资源高分子材料高性能化和实用化技术等方面的研究，xdzhou@ecust.edu.cn。

状,加上 CF/PEEK 预浸带材料的多向异性,建立一个能够准确描述传热过程的物理模型具有较大难度[20]。

本文研究中使用自主设计的热塑性复合材料红外加热缠绕成型原理样机,以自制的 CF/PEEK 单向带为原料,通过单因素实验研究了工艺参数对 CF/PEEK 缠绕 NOL 环层间剪切强度的影响,得到了最优的工艺条件,制备出层间剪切性能良好的 CF/PEEK 缠绕制品。

## 1 实验材料及方法

### 1.1 实验材料

连续碳纤维增强聚醚醚酮复合材料单向带,实验室自制,预浸带宽度为 12 mm,平均厚度为 80 μm。使用该预浸带制备的 CF/PEEK 复合材料层压板力学性能如表 1 所示。

表 1 CF/PEEK 预浸带层压板的力学性能

Table 1 Mechanical properties of CF/PEEK composites

| 力学性能 | 单向层压板 | 0°+90° 双向层压板 |
|---|---|---|
| 拉伸强度/MPa | 2370 | 1114 |
| 拉伸模量/GPa | 125 | 62 |
| 弯曲强度/MPa | 2157 | 1317 |
| 弯曲模量/GPa | 137 | 67 |
| 压缩强度/MPa | 1160 | - |
| 短梁层间剪切强度/MPa | 116 | 96 |
| 缺口冲击韧性/kJ·m$^{-2}$ | 93 | 80 |
| 泊松比 | 0.32 | - |
| 碳纤维体积分数 | 62% | |
| 碳纤维 | T700 12K | |
| PEEK | Victrex 450 PF | |

### 1.2 实验设备

实验设备主要包括缠绕成型设备和相关测试仪器。缠绕成型设备为课题组自行研制,由芯模(直径为 100 mm)、红外加热套、送料装置、下压辊、导丝头等组成。原理样机装置如图 1 所示。红外加热套内置 15 根石英加热管,总功率为 3 kW。下压辊连接在气缸导杆上,利用空气压缩机气动传动施压,通过控制气缸的压力来调节下压力,下压辊一端接有旋转接头,通入压缩空气进行冷却。选用东莞谦毅精密机电有限公司 GTC-40A 全自动控制器控制送料张力。

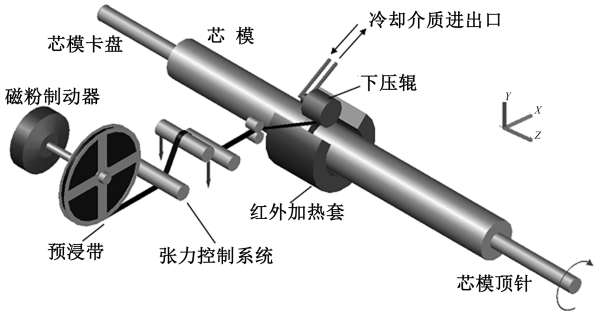



图 1 红外加热 CF/PEEK 缠绕成型装置

Fig. 1 Infrared heating prepreg tape winding system

### 1.3 CF/PEEK 缠绕环的制备

在开始缠绕前,先打开红外加热套开关,设定加热温度为 370 ℃~420 ℃,主轴带动芯模旋转预热,当芯模表面温度达到 300 ℃左右时,即可开始缠绕。当缠绕厚度达到 3 mm 时,剪断预浸带,关闭张力控制器和红外加热开始冷却,待芯模表面温度降到 80 ℃,脱模制得 CF/PEEK 缠绕 NOL 环。

### 1.4 测试与表征

(1)使用中国台湾路昌 TM-947SD 四通道温度计测量 NOL 环内部温度,该温度计具有存储记忆功能,实验结束可将温度数据导出。将四通道温度计固定在芯模一端并跟随芯模同步转动,分别在第一层缠绕时,缠绕厚度达到 1.5 mm 时和最后一层缠绕时将三根热电偶补偿线依次随预浸带卷入 NOL 环内部,补偿线方向与预浸带垂直,三根热电偶相距 5 mm 左右,以保证测量结果是 NOL 环同一部位沿径向的温度。

(2)采用深圳新三思材料检测有限公司 CMT4204 型(20 kN)电子万能材料试验机测试层间剪切强度(ILSS)。使用 ASTM D 2344 标准,压头直径为 6 mm,支座支撑点直径为 3 mm。样条厚度 $h$ 大于 3 mm,宽度 $b=2h$,样条弧长 $l=6h$,跨距 $L=4h$,加载速率为 1 mm/min。

层间剪切测试后的 CF/PEEK 试样如图 2 所示,试样破坏形式均为层间剪切破坏,符合测试标准对有效破坏形式的要求。

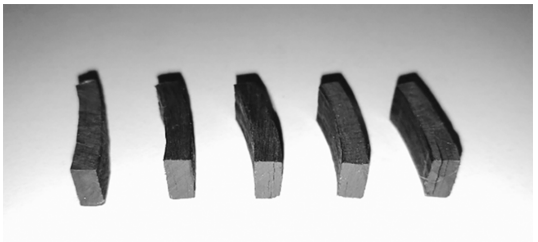


图 2 层间剪切测试后的 CF/PEEK 试样

Fig. 2 Tested ILSS samples of CF/PEEK composite ring

(3)DSC 测试结晶度:采用耐驰科学仪器商贸(上海)有限公司的 NETZSCH DSC 204 型差示扫描量热仪测定 CF/PEEK 缠绕环中的 PEEK 树脂的结晶度,测试时设定升温速率为 10 ℃/min。纤维体积含量为 62%,换算成质量分数为 69%。PEEK 的熔融结晶焓 $\Delta H_0$ 为 130 J/g[21],$X_c$%表示 PEEK 的结晶度。计算过程如下:

$$\Delta H_m = \frac{\Delta H}{\text{wt.}\%}$$

$$X_c\% = \frac{\Delta H_m}{\Delta H_0} \times 100\%$$

式中:wt.%为 CF/PEEK 中 PEEK 的质量分数;$\Delta H_m$ 为换算后 PEEK 的实际熔融焓;$\Delta H$ 为测试的 PEEK 结晶熔融焓;$\Delta H_0$ 为 PEEK 完全结晶熔融焓。

(4)CF/PEEK 缠绕制品浸渍效果分析。取切割后的 CF/PEEK 弧形试样,对其横断面依次使用金相砂纸、水磨机等打磨、抛光,然后清洗、烘干,采用德国 ZESS Observe.A1 m 金相显微镜观察试样中纤维和树脂的分散情况。

## 2　结果与讨论

影响 CF/PEEK 复合材料缠绕制品质量的因素主要包括芯模预热时间、送料张力、下压辊压力、冷却方式、成型温度、缠绕速率等。单独分析各因素对 NOL 环 ILSS 的影响,以获取最优的加工条件。

### 2.1　芯模温度的测量结果

在进行缠绕成型前,为使芯模表面的温度达到 PEEK 的熔点附近,从而使预浸带缠绕到芯模上之后立即熔融粘结,必须对芯模进行预热,而预热时间的设定至关重要。因此测量了设定温度 390 ℃和 410 ℃时加热套和芯模表面温度随时间的变化情况,如图 3 所示。可知,加热套内温度在 6 min 内即可达到稳定状态,实际温度远超设定温度,具有较高的加热效率。由于芯模需要通过辐射和空气对流传热,所以升温速率较慢。在预热 25 min 后,芯模表面的温度可达到 300 ℃。通过测试可知,该红外加热装置能够满足耐高温热塑性复合材料缠绕成型的温度要求,初步设定预热时间为 25 min。

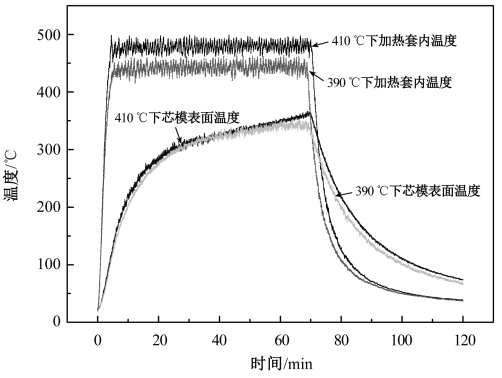



图 3　红外加热套和芯模表面的温度变化

Fig. 3　Temperature variation curve of infrared heating jacket and mandrel surface

预热时间达到 40 min 后,芯模表面的升温速度放缓,通过改变热电偶在芯模表面的位置,可测量出被红外加热套所包裹的部分芯模表面沿轴向的温度分布。结果如图 4 所示。中心点温度约为 340 ℃,中间约 5 cm 的区域温度高于 330 ℃,该温度能够使 CF/PEEK 预浸带中的 PEEK 树脂融化固结。

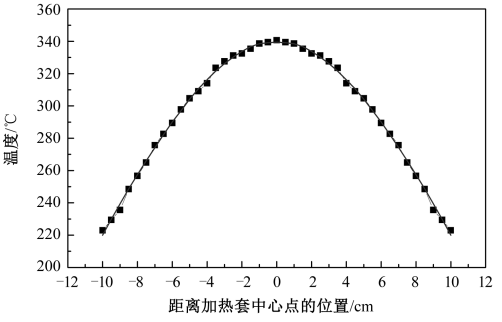



图 4　加热套内芯模表面的轴向温度分布

Fig. 4　Axial temperature distribution on the mandrel surface in the heating jacket

### 2.2　送料张力对 ILSS 的影响

在加热温度足够使 CF/PEEK 预浸带中树脂完全熔融的条件下,层间剪切强度主要取决于预浸带层与层之间的粘结程度,而送料张力和下压辊同时为树脂在层间的粘结提供动力,树脂在两种力量的作用下接触、扩散、粘结。为单独考查送料张力对 NOL 环层间剪切性能的影响,设置下压辊气缸压力为 0,成型温度为 390 ℃,预热时间为 25 min,芯模转速为 6 r/min,缠绕完成后让 NOL 环在加热套内缓慢冷却。在送料张力由 2 kg 至 10 kg 增加的过程中,NOL 环的 ILSS 测试结果如图 5 所示。

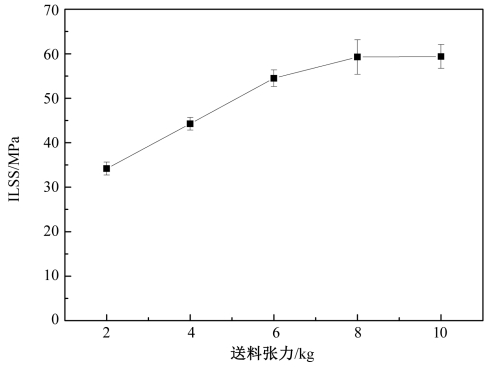



图 5 送料张力对 ILSS 的影响
Fig. 5 Effect of prepreg feed tension on ILSS

可见,CF/PEEK 环 ILSS 随着送料张力的增大而增大,但是当送料张力达到 8 kg 后,进一步增大送料张力不能提高 ILSS。因为送料张力不足时,预浸带变得松弛而不平整,导致芯模上预浸带之间的接触不够紧密,树脂粘结作用较差,表现为层间剪切强度较低。随着送料张力增加,预浸带得以张紧,平整度提高,层与层之间的贴合更加紧密,树脂粘结效果增强,所以层间剪切强度提高。但是送料张力只为促进熔融树脂分散、流动、粘结提供一部分动力,当张力达到 8 kg 以上后,树脂流动阻力和粘结动力已经达到平衡,所以张力的增大无助于 ILSS 的提高。因此在后续实验中,设定送料张力为 8 kg。

## 2.3 气缸压力对 ILSS 的影响

下压辊为预浸带之间的固结提供主要动力,其动力直接来源于气缸,因此气缸压力直接反映了辊压装置压力和固结动力大小。研究中将气缸压力作为缠绕工艺的可控参数,考查其压力大小对缠绕 NOL 环 ILSS 的影响。设置成型温度为 390 ℃,预热时间为 25 min,芯模转速为 6 r/min,送料张力为 8 kg,下压辊气缸压力调节范围为 0.12 MPa~0.36 MPa,缠绕完成后让 NOL 环在加热套内缓慢冷却。结果如图 6 所示。

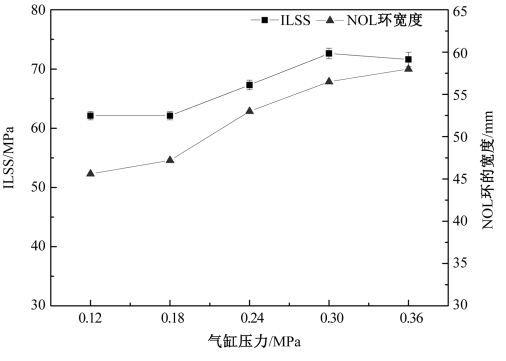



图 6 气缸压力对 ILSS 和环宽度的影响
Fig. 6 Effect of cylinder pressure on ILSS

在缠绕过程中施加了辊压作用后,NOL 环的层间剪切强度得到了明显提高。当气缸压力小于 0.18 MPa 时,不足以使预浸带之间达到紧密结合的状态,对 ILSS 的提高效果有限。但是当气缸压力大于 0.18 MPa 时,ILSS 显著提高,并在气缸压力为 0.30 MPa 时,达到最大值 72.62 MPa,气缸压力继续增大时,ILSS 反而减小。究其原因,气缸压力的增大为预浸带固结提供动力是压迫树脂流动分散的过程,使两层预浸带界面处的树脂融为一体,并得到压实。但是过大的下压力会导致熔融结合后的 PEEK 树脂从缠绕环的中心向环的两侧边缘流动,并引起缠绕环变宽。因为缠绕过程中,与下压辊接触的环中部是承受压力最大的位置,而环两侧不与下压辊接触受压最小,树脂在压力作用下必然由高压区向低压区流动。NOL 环内部的树脂在外力作用下被严重挤压到外侧,导致环内部各层间粘结强度下降,进而表现为 ILSS 的减小。

观察成型后的 NOL 环形貌可看到,环中央部位均呈现为黑色,且光滑平整,而环两侧边缘处明显有积聚到一起的树脂,呈现为白色或米黄色,并且气缸压力越大,制得的 NOL 环越宽,环边缘处积聚的树脂越多。所以,气缸压力过高并不一定有利于缠绕过程的操作,反而会对 NOL 环尺寸的控制带来较大影响。

## 2.4 冷却速率对 ILSS 的影响

PEEK 是一种半结晶性的聚合物,其力学性能很大程度上依赖于自身的结晶度。缠绕过程中,冷却速率会对 PEEK 树脂的结晶度、复合材料收缩速率和缠绕热应力等产生较大影响,必定会影响 NOL 环的层间剪切性能。整个缠绕过程由“预热+缠绕+冷却”三部分组成,预热时间和冷却时间是整个过程中的辅助时间,关系到缠绕成型的生产效率。为研究冷却速率对 ILSS 的影响,设置成型温度为 390 ℃,预热时间为 25 min,芯模转速为 6 r/min,送料张力为 8 kg,下压辊气缸压力为 0.30 MPa,缠绕完成后分别采用缓慢冷却、自然冷却和快速水冷三种冷却方式。缓慢冷却时,让 NOL 环在加热套的遮罩下冷却;自然冷却时撤去外部加热套,缠绕结束后即让 NOL 环直接裸露在空气中;快速水冷时通过旋转接头往芯模内通冷却水以实现快速降温。

图 7 是缓慢冷却条件下最内层、中间层和最外

层的温度变化,由于热量要从内向外扩散,所以内层温度>中间层温度>最外层温度,最内层比最外层温度高 7 ℃。同样可测得自然冷却和快速水冷时的温度情况。自然冷却时,最内层比最外层温度高 16 ℃。然而采用快速水冷时,芯模内冷却水导热和空气对流同时散热,但是前者起到主导作用,所以最内层温度<中间层温度<最外层温度,最内层与最外层的最大温差约为 21 ℃。内外层较大的温差会导致不同部位 PEEK 的结晶度不同,对制品性能产生影响。

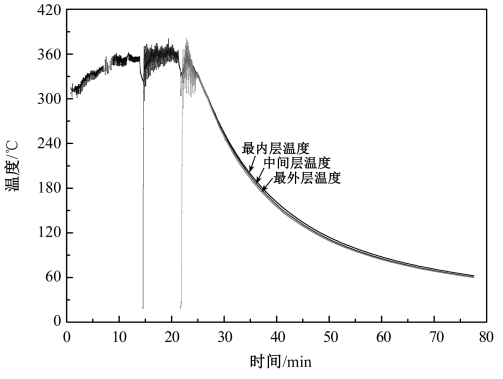



图 7　缓慢冷却条件下最内层、中间层和最外层的温度变化

Fig. 7　Temperature curve of NOL under slow cooling condition

以 NOL 环中间层温度测量数据为准,计算从最高温度降低到 180 ℃时的冷却速率,因为温度低于 180 ℃时,PEEK 的结晶度已经稳定,不会发生变化。图 8 为不同条件下对应的冷却速率和 ILSS 测试结果。可见随着冷却速率的增大,层间剪切强度减小。快速冷却的降温速率达到 95.2 ℃/min,冷却 5 min 即可脱模,具有较高的效率,但是制品的 ILSS 最低。缓慢冷却时,降温速率为 14.7 ℃,虽然冷却较慢,但是制备的 NOL 层间剪切强度最高。三种条件下 PEEK 树脂的结晶度测试结果如表 2 所示,冷却速率越快,PEEK 的结晶度越低,缓慢冷却制备的 CF/PEEK 复合材料 NOL 环的结晶度达到了 28.76%。因为冷却速率较低时,PEEK 的结晶较为充分,尺寸稳定性较好,其强度和刚度均有所提高。冷却速率过快,PEEK 树脂来不及结晶而形成非晶结构,导致结晶度降低,力学性能下降[22]。三种冷却方式下 PEEK 结晶度的差异应是引起 ILSS 差异的主要因素。

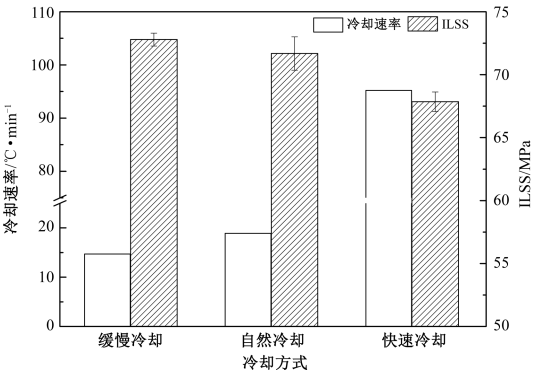



图 8　冷却速率对 ILSS 的影响

Fig. 8　Effect of cooling rate on ILSS

表 2　冷却速率对 CF/PEEK 结晶度的影响

Table 2　Effect of cooling rate on CF/PEEK crystallinity

| 冷却方式 | 缓慢冷却 | 自然冷却 | 快速冷却 |
|---|---|---|---|
| $\Delta H$/J·g$^{-1}$ | 11.59 | 10.98 | 9.95 |
| $\Delta H_m$/J·g$^{-1}$ | 37.39 | 35.42 | 32.10 |
| $X_c$/% | 28.76 | 27.25 | 24.69 |

因此,在进行缠绕成型时,应采用较低的冷却速率,这样有利于 PEEK 树脂充分结晶,提高 PEEK 树脂结晶度,使材料在冷却中均匀收缩,减小残余热应力,有利于最终制品性能的提升。

## 2.5　成型温度对 ILSS 的影响

为使缠绕成型中 CF/PEEK 预浸带能够形成紧密、稳定的固结,必须保证在加工过程中 PEEK 充分熔融。成型温度的高低不仅影响预浸带的传热和熔融固结,也会影响缠绕成型速率,温度较高时缠绕速率更容易提高。为研究温度对 CF/PEEK 缠绕成型的影响,实验中设置成型温度为 370 ℃~420 ℃,预热时间为 25 min,芯模转速为 6 r/min,送料张力为 8 kg,下压辊气缸压力为 0.30 MPa,缠绕完成后让 NOL 环在加热套内缓慢冷却。CF/PEEK 环的层间剪切强度测试结果如图 9 所示。

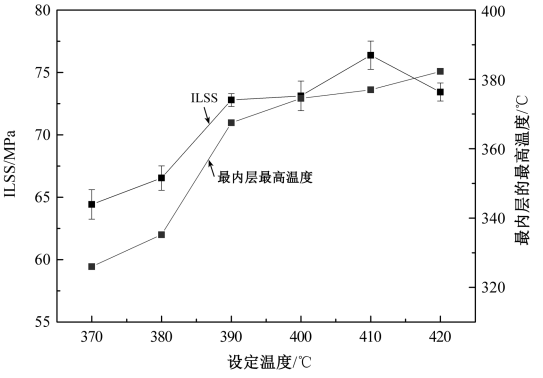



图 9　成型温度对 ILSS 的影响

Fig. 9　Effect of molding temperature on ILSS

成型温度从 370 ℃增加到 410 ℃,NOL 环的层间剪切强度提高,当温度为 410 ℃时,ILSS 达到最大,为(76.38±1.13) MPa,但是继续升高温度时 ILSS 却降低。测试了缠绕过程中 NOL 环最内层的温度变化,发现最内层温度随着成型温度的提高而提高,成型温度为 420 ℃时,最内层的温度达到了 385 ℃。由图 7 可知,成型过程中,环内温度分布由内向外依次升高,测试所得 420 ℃时,最外层的温度为 396 ℃。整个缠绕过程历时约 40 min,PEEK 长时间处于 390 ℃左右的高温中,会出现一定的热交联,树脂交联后力学性能下降,导致了在 420 ℃温度下进行缠绕成型时 ILSS 下降。因此,成型温度太低,部分树脂不能充分融化,导致无法完全粘结,层间剪切强度较低;温度过高,树脂基体会发生交联反应,同样会降低层间剪切强度,对于本装置,成型温度设定为 410 ℃较合适。

## 2.6 缠绕速率对 ILSS 的影响

影响缠绕成型制品性能和生产效率的不仅有成型温度,也有缠绕速率,因为缠绕速率快慢直接影响传热过程。缠绕速率正比于芯模转速,由于车床主轴电机的旋转特性所限,缠绕设备的最低转速为 6 r/min,而且该转速下缠绕效率较低,因此后续研究中提高了芯模转速。设置成型温度为 410 ℃,预热时间为 25 min,送料张力为 8 kg,下压辊气缸压力为 0.30 MPa,芯模转速为 6 r/min~18 r/min,对应缠绕速率为 31.4 mm/s~94.2 mm/s,缠绕完成后使 NOL 环在加热套内缓慢冷却。CF/PEEK 环的层间剪切强度测试结果如图 10 所示。

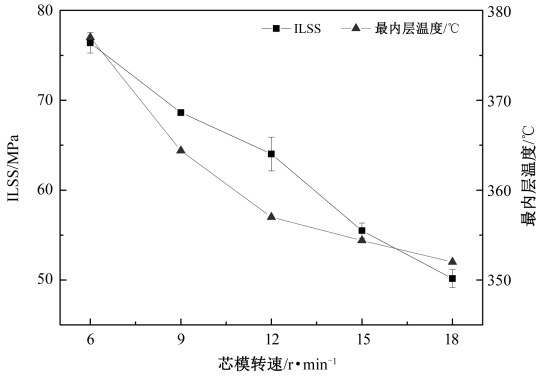



图 10 缠绕速率对 ILSS 的影响

Fig. 10 Effect of winding rate on ILSS

芯模转速提高,缠绕速率也提高,但是 NOL 环 ILSS 却呈现下降趋势。原因是提高缠绕速率,降低了传热效率,导致预浸带中 PEEK 熔融不够充分,同时辊压作用时间随之减少,层与层之间 PEEK 树脂的流动、分散、粘结作用减弱。另外缠绕速率提高后,缠绕同样厚度的 NOL 环的加工时间缩短,整体加热时间也缩短,导致了最内层的最高温度下降,直接弱化了环内部各层预浸带之间的粘结[17]。因此对于本设备,提高缠绕速率虽然提升了加工效率,但是不利于制品性能的提高。

## 2.7 芯模预热时间对 ILSS 的影响

开始缠绕前,必须对芯模进行预热,以便 CF/PEEK 预浸带接触芯模后尽快达到加工温度。芯模预热时间长短决定着芯模表面温度和缠绕结束后环内层温度的高低。如图 3 所示,随着预热时间的增加,芯模表面温度逐渐提高,当预热时间达到 40 min 后,芯模表面升温速率下降,温度趋向稳定。因此,设定成型温度为 410 ℃,预热时间分别为 25 min、35 min、45 min,研究芯模预热时间对 ILSS 的影响。其他条件为送料张力为 8 kg,下压辊气缸压力为 0.30 MPa,芯模转速为 6 r/min,缠绕完成后使 NOL 环在加热套内缓慢冷却。实验结果如图 11 所示,NOL 环的层间剪切强度随着预热时间的延长而增大,预热时间为 45 min,CF/PEEK 缠绕环制品的层间剪切性能达到了(82.29±1.27) MPa,比预热 25 min 提高了 7.7%。因为预热时间延长后,芯模表面温度升高,可使 NOL 环内层预浸带充分熔融,改善其流动性,有利于层间粘结。

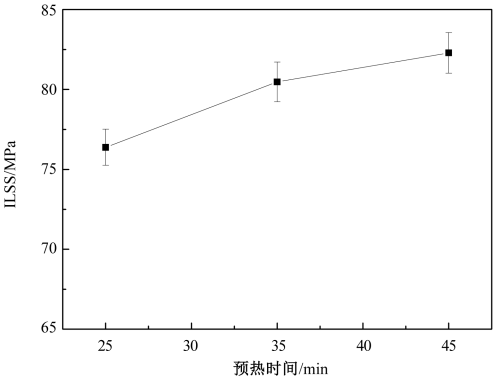



图 11 预热时间对 ILSS 的影响

Fig. 11 Effect of mandrel preheating time on ILSS

芯模转速为 6 r/min,缠绕速率为 31.4 mm/s,缠绕效率较低。为了验证使用红外加热缠绕成型装置进行高速缠绕的可能性,设置芯模转速为 9 r/min,缠绕温度为 410 ℃,预热 45 min,实验测得该条件下制备的 CF/PEEK 环层间剪切强度为(74.36±1.29) MPa,相比芯模转速为 6 r/min 时的缠绕制品,存在

较大差距。说明该实验装置适用于低速缠绕成型,红外加热的效率较低,较难满足高速缠绕成型的要求。

### 2.8　CF/PEEK 复合材料环的纤维分散和浸渍效果

纤维增强复合材料中,增强纤维和树脂基体的分散状况和效果决定了材料最终的力学性能,纤维和树脂分散越均匀,浸渍效果越好,材料空隙率越低,层间剪切强度越高。为了更加直观地研究缠绕成型后碳纤维和 PEEK 树脂的分散状况,采用金相显微镜对 ILSS 最高的试样横断面进行观察。得到的光学照片如图 12 所示。

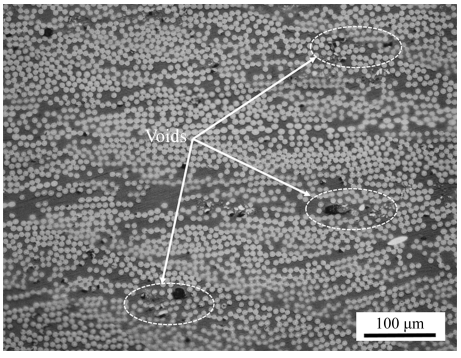



图 12　CF/PEEK 环横断面的金相显微镜照片

Fig. 12　Optical cross section of CF/PEEK composite ring

可见,CF/PEEK NOL 环中各层预浸带已经完全熔融重新固结到一起,层与层之间的界限消失,并且碳纤维和 PEEK 树脂基本实现了较为均匀的分散,鲜有树脂富集区和纤维富集区,树脂对碳纤维的浸渍效果较好。但是必须观察到材料内部也存在一定的空隙。复合材料空隙率越高,其层间剪切强度越低,空隙的存在导致 CF/PEEK 复合材料环形制品的层间剪切强度低于模压成型层压板。已有研究普遍证明,热压成型复合材料要比缠绕成型具备更高的层间剪切强度[23]。

综上所述,CF/PEEK 复合材料缠绕成型的最优工艺参数为成型温度为 410 ℃,预热 40 min,送料张力为 8 kg,下压辊气缸压力为 0.30 MPa,芯模转速为 6 r/min,缓慢冷却。最后采用该工艺条件进行了缠绕管道的试制,制备出长度为 350 mm,厚度为 3.5 mm 的 CF/PEEK 缠绕管道。经测试,其 ILSS 为(86.46±1.80) MPa。

## 3　结　论

(1)通过单因素实验研究了不同工艺参数对连续碳纤维增强聚醚醚酮复合材料缠绕成型环形制品层间剪切强度的影响规律,并得到了优化的缠绕成型工艺参数,实验结果表明,成型温度为 410 ℃,预热 40 min,送料张力为 8 kg,下压辊气缸压力为 0.30 MPa,芯模转速为 6 r/min,缓慢冷却条件下制得的缠绕制品层间粘结性能最佳,层间剪切强度达到(82.29±1.27) MPa;

(2)观察了 CF/PEEK 复合材料 NOL 环横断面,结果显示缠绕制品内部纤维和树脂分散比较均匀,浸渍效果较好;

(3)采用优化后的工艺制备了 CF/PEEK 复合材料管道,表明红外加热是一种较为有效的加热方式,适用于连续碳纤维增强耐高温热塑性复合材料的缠绕成型,可为今后的研究和应用提供参考。

## 参考文献

[1] 许家忠, 乔明, 尤波. 纤维缠绕复合材料成型原理及工艺[M]. 北京: 科学出版社, 2013: 16-22.

[2] 张婷. 高性能热塑性复合材料在大型客机结构件上的应用[J]. 航空制造技术, 2013, 435(15): 32-35.

[3] Yassin K H M. Processing of thermoplastic matrix composites through automated fiber placement and tape laying methods: A review[J]. Journal of Thermoplastic Composite Materials, 2018, 31(12): 1676-1725.

[4] Stokes-Griffin CM, Compston P. The effect of processing temperature and placement rate on the short beam strength of carbon fibre-PEEK manufactured using a laser tape placement process[J]. Composites Part A Applied Science & Manufacturing, 2015, 78: 274-283.

[5] Stokes-Griffin C M, Compston P. Investigation of sub-melt temperature bonding of carbon-fibre/PEEK in an automated laser tape placement process[J]. Composites Part A Applied Science & Manufacturing, 2016, 84: 17-25.

[6] Comer A J, Ray D, Obande W O, et al. Mechanical characterisation of carbon fibre-PEEK manufactured by laser-assisted automated-tape-placement and autoclave[J]. Composites Part A Applied Science & Manufacturing, 2015, 69: 10-20.

[7] Khan M A, Mitschang P, Schledjewski R. Identification of some optimal parameters to achieve higher laminate quality through tape placement process[J]. Advances in Polymer Technology, 2010, 29(2): 98-111.

[8] 唐邦铭. 热塑性预浸带缠绕工艺参数及加热方式对成型质量及内应力的影响[J]. 复合材料学报, 1999, 16(2): 21-28.

[9] 王鑫, 李勇, 还大军. CF/PEEK 超声原位固结铺放及其复合材料力学性能[J]. 航空学报, 2018, 39(9): 224-232.

[10] Li W, Gao W J, Chen P. Winding of high performance thermoplastic PPESK composites using on-line solution impregnation and in situ consolidation[J]. Advanced Materials Research, 2011, 194-196: 1586-1589.

[11] Rizzolo R H, Walczyk D F. Ultrasonic consolidation of thermoplastic composite prepreg for automated fiber placement[J]. Journal of Thermoplastic Composite Materials, 2016, 29(11): 1480-1497.

[12] Palardy G S F, Beurden M V, et al. Continuous ultrasonic welding of thermoplastic composite plates[C]//Automated Composites Manufacturing-Third International Symposium. 2017 (acm).

[13] Williams F B M. Xenon flashlamp heating for automated fibre placement[C]//Automated Composites Manufacturing-Third International Symposium. 2017 (acm).

[14] Lu H, Schlottermuller M, Himmel N, et al. Effects of tape tension on residual stress in thermoplastic composite filament winding[J]. Journal of Thermoplastic Composite Materials, 2005, 18(6): 469-487.

[15] 李旭武, 周晓东, 郭兵兵, 等. 工艺条件对两步法缠绕成型连续玻璃纤维增强聚丙烯管材层间剪切强度及树脂含量的影响[J]. 玻璃钢/复合材料, 2011(6): 64-67.

[16] Jdbw Z. Thermal analysis of continuous filament-wound composites [J]. Journal of Thermoplastic Composite Materials, 1996, 9(1): 54-75.

[17] Romagna J, Ziegmann G, Flemming M. Thermoplastic filament winding-an experimental investigation of the on-line consolidation of poly(ether imide) fit preforms[J]. Composites Manufacturing, 1995, 6(3-4): 205-210.

[18] Nakouzi S, Pancrace J, Schmidt FM, et al. Curing simulation of composites coupled with infrared heating[J]. International Journal of Material Forming, 2010, 3(1): 587-590.

[19] Yousefpour A, Nejhad M N G. Experimental and computational study of APC-2/AS4 thermoplastic composite C-Rings[J]. Journal of Thermoplastic Composite Materials, 2001, 14(2): 129-145.

[20] Chinesta F, Leygue A, Bognet B, et al. First steps towards an advanced simulation of composites manufacturing by automated tape placement[J]. International Journal of Material Forming, 2014, 7(1): 81-92.

[21] Blundell D J, Osborn B N. The morphology of poly(aryl-ether-ether-ketone)[J]. Polymer, 1983, 24(8): 953-958.

[22] Gao S L, Kim J K. Cooling rate influences in carbon fibre/PEEK composites. Part 1. Crystallinity and interface adhesion[J]. Composites Part A, 2000, 31(6): 517-530.

[23] Qureshi Z, Swait T, Scaife R, et al. In situ consolidation of thermoplastic prepreg tape using automated tape placement technology: Potential and possibilities[J]. Composites Part B Engineering, 2014, 66(11): 255-267.

## EFFECT OF INFRARED HEATING WINDING FORMING PROCESS PARAMETERS ON INTERLAMINAR SHEAR PROPERTIES OF CF/PEEK COMPOSITES

SHAN Hao, CHEN Yu, LI Jun-jie, YAO Qian

(Key Laboratory of Specially Functional Polymeric Materials and Related Technology, East China University of Science and Technology, Shanghai 200237, China)

**Abstract**: In order to manufacture continuous carbon fiber reinforced polyetheretherketone composites (CF/PEEK) winding product with excellent interlayer adhesion performance, the CF/PEEK unidirectional tape prepared by powder impregnation process was used as raw material, and the winding forming process was studied by using a self-made high-power infrared heating thermoplastic composite winding forming equipment. The quality of the winding products were evaluated by testing the interlaminar shear strength. The effects of key process parameters such as feed tension, compaction force, winding rate, winding temperature, preheating time and cooling rate on the performance of CF/PEEK ring products were studied. The results showed that the winding products had an excellent performance manufactured under the optimal condition as follow: molding temperature 410 ℃, preheating for 45 minutes, feeding tension 8 kg, cylinder pressure of roller 0.30 MPa, mandrel rotating speed 6 r/min, and slow cooling condition. The interlaminar shear strength of the prepared CF/PEEK ring was up to 82.29 MPa. Based on the above research results, the CF/PEEK winding pipe was prepared.

**Key words**: CFRTP; polyetheretherketone; infrared heating; winding process; interlaminar shear strength