

定型压力对 PES 薄膜改性复合材料拉伸性能的影响研究

瞿立, 李进*, 康少付, 张佃平

(宁夏大学宁夏光伏材料重点实验室, 银川 750021)

摘要: 复合材料以优异的综合性能被广泛用于航空航天和汽车等领域,但高昂的制造成本阻碍了其进一步应用;低成本制造高性能复合材料一直是研究热点。针对真空辅助成型(VARTM)工艺所得复合材料力学性能差的不足,将聚醚砜(PES)薄膜置于预制体纤维层间,在一定温度和定型压力下制得改性预制体,最后采用 VARTM 工艺制得改性复合材料。研究了 0.1 MPa、0.3 MPa 和 0.6 MPa 定型压力下所得改性复合材料的拉伸性能,结果表明,与未改性复合材料相比,改性复合材料试样的拉伸强度和模量性能均得到提高。三种定型压力下改性复合材料的拉伸强度分别提高了 16.78%、41.21% 和 29.47%,拉伸模量分别提高了 2.48%、19.01% 和 13.22%,为低成本制造高性能复合材料提供了参考。

关键词: 复合材料; 定型压力; 聚醚砜薄膜; VARTM 工艺; 拉伸性能

中图分类号: TB332 **文献标识码:** A **文章编号:** 1003-0999(2018)12-0057-05

1 引言

纤维增强树脂基复合材料以高比强度、高比模量、耐腐蚀、抗疲劳性能好、成型快和设计性强等优异性能被广泛用于航空航天、汽车和船舶等领域^[1,2],但高昂的制造成本限制了其在成本控制严格领域中的应用;有效降低复合材料成本已成为研究的热点,众多低成本制造技术应运而生^[3]。

真空辅助成型(VARTM)工艺被认为是一种具有前途的复合材料低成本技术,它使用低粘度树脂在真空压力梯度下浸润干态预制体织物,并在一定温度下制得复合材料^[4,5]。但该工艺所得复合材料制件具有孔隙率含量高、纤维体积分数低、力学性能差等不足,严重阻碍了其在高性能领域的应用^[6-8]。复合材料构件形状日益复杂化,而干态织物难以直接形成复杂曲面^[9,10]。工程上将环氧树脂胶喷涂在模具和织物表面从而达到定型目的^[11-13],这种方法操作简便,所用定型剂通常与浸润树脂匹配性较好。但环氧树脂定型剂通常脆性较大,易在织物层间分布不均匀,从而影响所得复合材料的最终性能^[14-16]。

本文提出将聚醚砜薄膜置于织物层间,在一定温度和压力下制得改性预制体,并采用 VARTM 工艺制得改性复合材料,考察 0.1 MPa、0.3 MPa 和 0.6 MPa 下改性复合材料的拉伸性能,并与未改性情形对比;验证了基于 PES 薄膜改性预制体采用 VARTM 工艺制造高性能复合材料的可行性。

2 材料与方法

2.1 材料

试验用织物为单轴向 T700 碳纤维(SCFW430-24K,威海光威复合材料股份有限公司,单层织物厚度为 0.31 mm,面密度为 460 g/m²)。热塑性薄膜是一种改性聚醚砜材料(L-120,上海高尔热熔胶有限公司,单层厚度为 0.05 mm,面密度为 30 g/m²,熔点为 125 °C~135 °C)。树脂是由双酚 A 型基体(EA170)和固化剂(XB3486)以 3:1 的质量比混合得到的,在 80 °C/1 h+130 °C/2 h 条件下完成固化。为提高树脂的浸润性能,试验中将树脂置于 45 °C 的水浴中降低粘度,该温度下树脂粘度为 0.06 Pa·s。

2.2 方法

图 1 为热压定型过程中织物和 PES 薄膜铺放位置示意图。首先,将纤维织物裁剪成能够加工出拉伸性能试样尺寸和所需试样数目的长方形,并将 PES 薄膜裁成与预制体织物相同大小的形状;其次,将 PES 薄膜与纤维织物间隔放置,确保预制体上、下表面均为纤维织物;然后,将叠放好的预制体采用真空袋法封装密封,并将其放置在可自行控温的装置中,在 130 °C 环境下保温 0.5 h,此时 PES 薄膜将在织物层间熔融并起到定型作用;最后,分别在 0.1 MPa、0.3 MPa 和 0.6 MPa 的压力下制得改性预制体,并基于 VARTM 工艺制造改性复合材料,考察定型压力对其拉伸强度及模量性能的影响。

收稿日期: 2018-04-23

基金项目: 宁夏自然科学基金(NZ17259);福建省特种先进材料重点实验室资助课题

作者简介: 瞿立(1994-),男,硕士,主要从事复合材料的制备工艺、性能测试及模拟仿真方面的研究。

通讯作者: 李进(1964-),女,博士,教授,主要从事复合材料的结构设计、制造、仿真以及光伏材料方面的研究, li-jin@163.com。

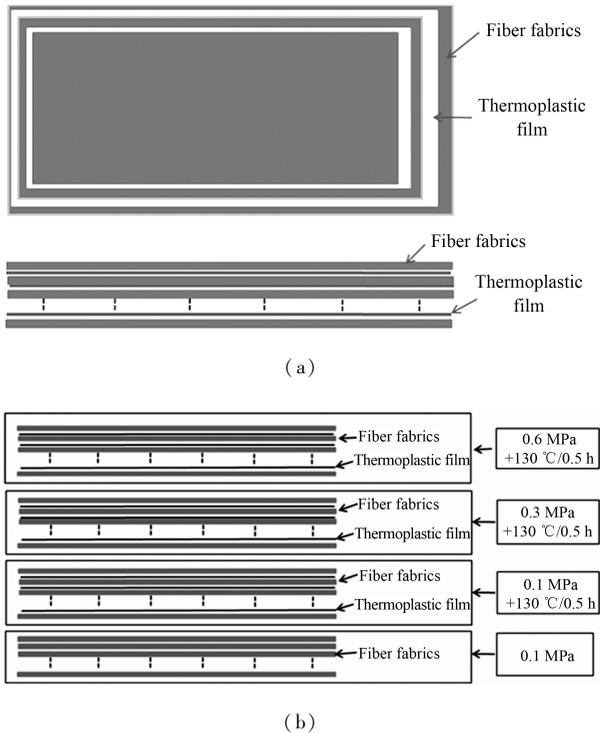


图 1 预制体织物与聚醚砜薄膜(a)叠放顺序及(b)不同压力处理方法

Fig. 1 Processing methods of the carbon fiber fabrics and the PES film in present study: (a) stacking sequence; (b) modification conditions

对改性前后复合材料制件的拉伸性能进行测试。考虑试验用织物和 PES 单层厚度,改性复合材料所用预制体由 6 层纤维织物和 5 层 PES 薄膜在一定温度和压力下处理得到;未改性复合材料用预制体仅包含 6 层纤维织物。拉伸试验按照 ASTM 3039 标准中的要求进行,见图 2。

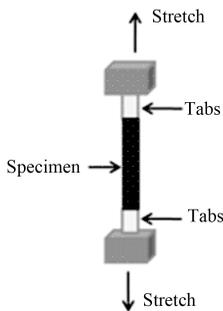


图 2 复合材料拉伸性能试验示意图

Fig. 2 Diagram of the tensile property test

2.3 试样件信息

为便于阐述讨论,文中将不含 PES 膜在 0.1 MPa 处理的改性预制体记为 A,将含 PES 膜在 0.1

MPa 处理的改性预制体记为 B,将含 PES 膜在 0.3 MPa 处理的改性预制体记为 C,将含 PES 膜在 0.6 MPa 处理的改性预制体记为 D,如表 1 所示。

表 1 测试试样信息汇总

Table 1 Information of the tested specimens

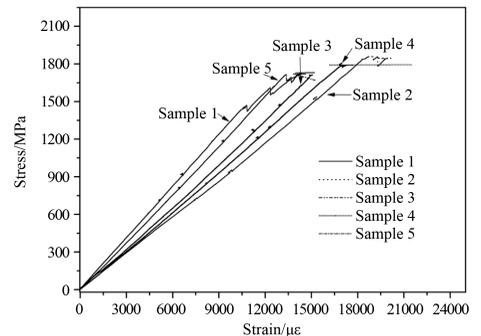
有无热塑性薄膜	处理压力/MPa	试样编号
无	0.1	试样 A
有	0.1	试样 B
有	0.3	试样 C
有	0.6	试样 D

3 结果与讨论

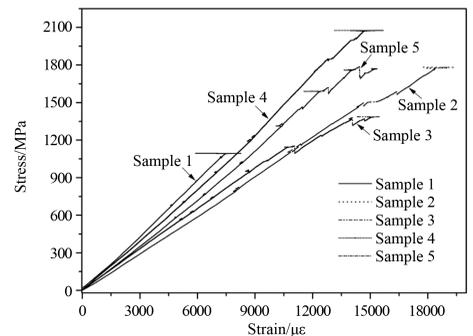
研究三种处理压力所得改性复合材料的拉伸强度和模量性能,并与对应未改性情形对比,考察定型工艺的合理性。

3.1 复合材料拉伸试验结果

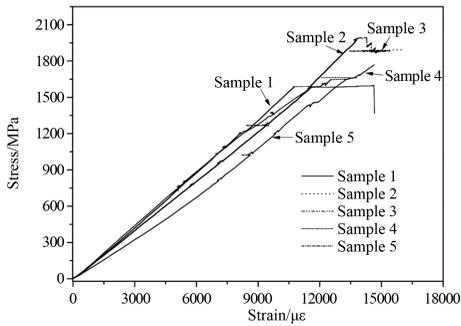
未改性和三种改性复合材料层板的拉伸试验应力-应变关系如图 3 所示,每种情形测试五个试样。图 3(a)为未改性复合材料的试验结果,图 3(b)至图 3(d)分别为三种定型压力下改性复合材料的测试结果。由图 3 可以看出,应力-应变关系曲线呈现出线性特征,同时测试结果具有良好的一致性。



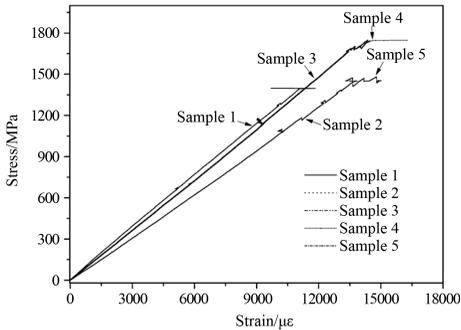
(a) Sample A



(b) Sample B



(c) Sample C



(d) Sample D

图3 四种复合材料试样应力-应变关系

Fig. 3 Stress and strain relations of four kinds of laminates samples

测试结果表明,改性复合材料的拉伸强度和拉伸模量均得到提高,其与所用定型压力大小有关。四种复合材料拉伸强度和拉伸模量性能的测试结果分别在表2和表3中给出。由表2、表3可以看出:与未改性复合材料的拉伸强度相比,在0.1 MPa、0.3 MPa和0.6 MPa压力下,对应改性复合材料强度分别提高了16.78%、41.21%和29.47%;三种改性复合材料的拉伸模量分别提高了2.48%、19.01%和13.22%。复合材料层板强度和模量性能的提高可使科研人员在结构设计时能够更充分地发挥材料性能。

表2 测试试样的拉伸强度

Table 2 Tensile strength of the specimens

试样编号	拉伸强度/MPa			
	A	B	C	D
1	1417	1732	2024	1892
2	1489	1696	2096	1908
3	1460	1712	2093	1903
4	1477	1701	2059	1909
5	1489	1721	2077	1878
平均值	1466	1712	2070	1898
增幅/%	-	16.78	41.21	29.47

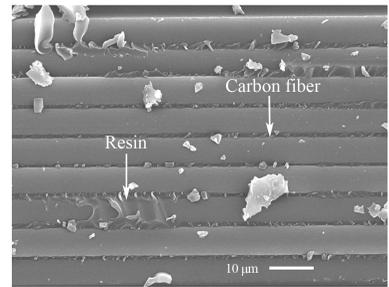
表3 测试试样的拉伸模量

Table 3 Tensile modulus of the specimens

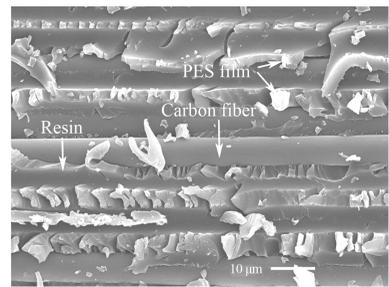
试样编号	拉伸模量/GPa			
	A	B	C	D
1	125	128	148	136
2	115	125	143	139
3	124	118	148	140
4	122	120	145	143
5	118	127	138	127
平均值	121	124	144	137
增幅/%	-	2.48	19.01	13.22

3.2 试验结果讨论

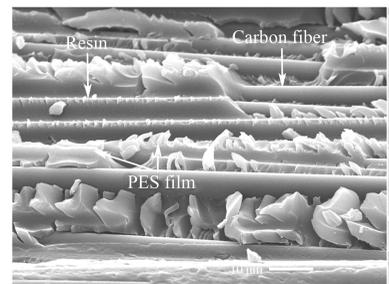
采用SEM图法对改性前后复合材料力学性能差异的微观机理进行研究。图4与图5分别为四种复合材料平行和垂直纤维方向试样断面的SEM图。改性前后复合材料中纤维的表面形态发生了变化,与未改性情形相比,改性后纤维表面变得粗糙,这有利于提高纤维和树脂间的界面结合作用。



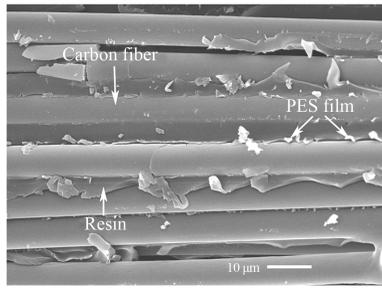
(a) Sample A



(b) Sample B



(c) Sample C

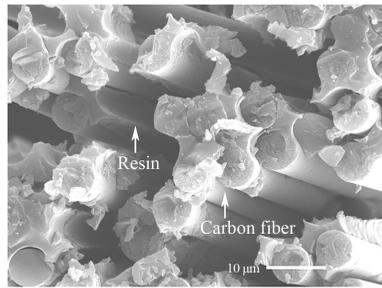


(d) Sample D

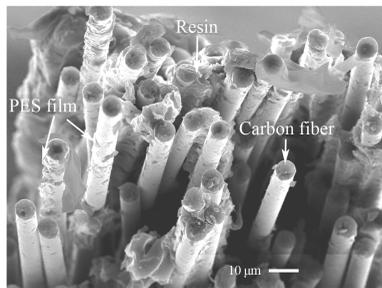
图 4 四种复合材料拉伸试样平行纤维方向的断面分析
Fig. 4 SEM images of the tensile samples parallel to the fiber

图 4(a) 表明未改性复合材料表现出典型的脆性断裂, 纤维表面光滑; 而其他三种改性复合材料试样纤维表面相对粗糙, 见图 4(b) 至图 4(d), 这是由于置于织物层间的 PES 薄膜在成型过程中以包裹在纤维表面和渗透在纤维束间隙的形式改变了预制体织物表面特征, 增强了纤维和树脂基体的界面粘接特性, 提高了界面结合能力。

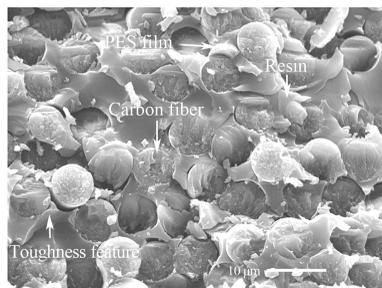
图 5 中四种试样断口截面垂直纤维方向的 SEM 图清晰地给出了试样受拉伸载荷时纤维和树脂基体的微观形貌。



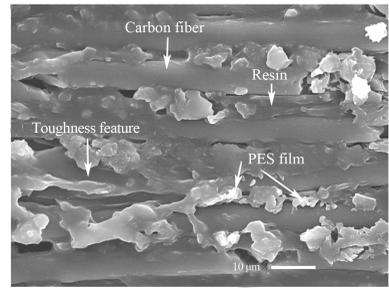
(a) Sample A



(b) Sample B



(c) Sample C



(d) Sample D

图 5 四种复合材料拉伸试样垂直纤维方向的断面分析
Fig. 5 SEM images of the tensile samples vertical to the fiber

从垂直纤维断口微观形貌看: 未改性复合材料试样的断口表现出脆性断裂特征, 见图 5(a); 三种改性复合材料断口均表现出一定程度的韧性特征, 见图 5(b) 至图 5(d)。0.3 MPa 压力下所得改性复合材料的断口更明显, 其拉伸强度和模量在四种情形中最好。这对于采用 VARTM 工艺在不显著增加成本的前提下获得高性能复合材料具有工程意义。

研究表明, 将 PES 薄膜置于织物层间并在一定温度和压力下所得改性预制体, 可有效提高 VARTM 工艺所得复合材料的力学性能, 其提高效果与工艺压力有关。在一定范围内, 改性复合材料的拉伸性能随定型压力的增加而增大, 可能原因是 PES 薄膜熔融后会包裹和渗透在纤维表面和织物层间, 改变了纤维的表面形态, 影响了树脂浸润和界面性能。此外, 熔融后的 PES 薄膜有层间定型剂的作用, 增强了预制体织物的压实作用, 降低了所得复合材料的孔隙率。压力继续增加, 虽有利于继续降低复合材料的孔隙率, 但也使得树脂难以浸润纤维, 降低了界面载荷的传递效率以及改性复合材料的力学性能, 其微观机理需要深入研究。

4 结 论

论文针对 VARTM 工艺所得复合材料制件的不足, 提出将聚醚砜薄膜置于织物层间制得改性预制体, 有效提高 VARTM 工艺所得复合材料的力学性能。对改性前后复合材料的拉伸性能进行测试, 初步验证该方法的可行性, 但该方法对改性复合材料力学性能的提高与定型压力有关。结果发现, 在 0.3 MPa 下改性后复合材料的拉伸强度和模量提高了 20% 以上, 其微观机理仍需进行研究, 尤其需要对改性复合材料在湿热等腐蚀环境下的性能特征进行研究, 以全面评价论文所提方法的合理性。

参考文献

- [1] Robertson C F. Resin transfer molding of aerospace resins-a review [J]. *British Polymer Journal*, 2010, 20(5): 417-429.
- [2] Kang M K, Lee W I, Kelly P A. Analysis of vacuum bag resin transfer molding process[J]. *Composites Part A*, 2001, 32(11): 1553-1560.
- [3] Brouwer W D, Van Herpt E C F C, Laborus M. Vacuum injection molding for large structural applications [J]. *Composites Part A*, 2003, 34(6): 551-558.
- [4] Li W, Krehl J, Gillespie J W, et al. Process and performance evaluation of the vacuum-assisted process[J]. *Journal of Composites Materials*, 2004, 38(20): 1803-1814.
- [5] Duan Y, Tan Z, Zhao Y, et al. Compression responses of preform in vacuum infusion process[J]. *China Journal Aeronautics*, 2008, 21(4): 370-377.
- [6] Mishra S C. Low cost polymer composites with rural resources[J]. *Journal of Reinforced Plastics & Composites*, 2009, 28(28): 2183-2188.
- [7] Prabhu R, Frazer, Akshay, et al. Development and characterization of low cost bamboo fiber reinforced polymer composites[J]. *American Journal of Materials Science*, 2017, 7(5): 130-134.
- [8] 李柏松, 王继辉, 邓京兰. 真空辅助 RTM 成型技术的研究[J]. *玻璃钢/复合材料*, 2001(1): 17-19.
- [9] Singh A K, Mehra D S, Niyogi U K. Effect of tackifier and crosslinkers on electron beam curable polyurethane pressure sensitive adhesive [J]. *Radiation Physics and Chemistry*, 2012, 81(5): 547-552.
- [10] Hillermeier R W, Seferis J C. Interlayer toughening of resin transfer molding composites[J]. *Composites Part A*, 2001, 32(5): 721-729.
- [11] Hillermeier R W, Hayes B S, Seferis J C. Processing of highly elastomeric toughened cyanate esters through a modified resin transfer molding technique[J]. *Polymer Composites*, 1999, 20(1): 155-158.
- [12] Hillermeier R W, Hayes B S. Tackifier/binder toughened resin transfer molding composites[J]. *Journal of advanced materials-Covina*, 2000, 31(4): 52-59.
- [13] 乌云其其格, 胡仁伟, 何丹, 等. 定型剂对复合材料性能影响的研究[J]. *高科技纤维与应用*, 2013, 38(2): 31-35.
- [14] 廖永波, 梁子青, 李玲. 定型剂对复合材料力学性能的影响[J]. *化工新型材料*, 2006, 34(10): 62-65.
- [15] 高龙飞, 陈萍, 陈吉平, 等. 复合材料预成型粉末定型剂的制备[J]. *玻璃钢/复合材料*, 2016(1): 67-70.
- [16] Pelia R, Seferis J C, Karaki T, et al. Effects of nanoclay on the thermal and rheological properties of a VARTM epoxy resin [J]. *Journal of Thermal Analysis & Calorimetry*, 2009, 96(2): 587-592.

EFFECT OF THE TACKIFIED PRESSURE ON THE TENSILE PROPERTY OF THE PES FILM MODIFIED COMPOSITES

QU Li, LI Jin, KANG Shao-fu, ZHANG Dian-ping

(Key Laboratory of Ningxia for Photovoltaic Materials, Ningxia University, Yinchuan 750021, China)

Abstract: The composites have widely used in the aerospace and automotive field for the excellent performance. However, the high cost has hindered its further use and production of the high property composites with low cost has obtained the most concerns. In the present study, the hot-press tackified process was provided to improve the disadvantage of the VARTM of low mechanical property by using the PES (Polyethersulfone) film material interval stacked into the fabrics under certain temperature and pressure to get the modified preforms. Finally, the modified composites were obtained with the VARTM on the modified preforms. The pressures of 0.1 MPa, 0.3 MPa and 0.6 MPa were used to study the effect of tackifier pressure on the tensile strength and modulus on the modified composites, as compared to the unmodified composites. The results indicate that the tensile strength of the modified composites for the three tackifier pressures have improved by 16.78%, 41.21% and 29.47% respectively, and the tensile modulus have improved by 2.48%, 19.01% and 13.22%, which provide the guidance to obtain the high performance composites with low cost process of VARTM.

Key words: composites; tackified pressure; PES film; VARTM; tensile property