

玻璃纤维增强复合材料的 I 型层间断裂韧性

董雁瑾 杨海升 白以龙

(中国科学院力学研究所非线性连续介质力学开放研究实验室)

摘 要 介绍了玻璃纤维增强复合材料 I 型层间断裂韧性“Round Robin Test”的结果。随着偶联剂浓度的改变, I 型裂纹的扩展方式从稳态向非稳态转变。这类断裂韧性强烈地依赖界面性能。

关键词 界面性能 I 型断裂韧性 裂纹扩展 稳态 非稳态

分类号 TB333, O346

MODE I INTERLAMINAR FRACTURE TOUGHNESS OF GLASS WOVEN FABRIC REINFORCED COMPOSITES

DONG Yanjin* YANG Haisheng BAI Yilong

(Laboratory for Nonlinear Mechanics of Continuous Media, Institute of Mechanics,
The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

ABSTRACT Mode I interlaminar fracture toughness tests were carried out with glass stain woven fabric vinylester composites, which were treated by several different kinds of coupling agent, in order to identify the relation between interface properties and fracture behavior. Crack growth behavior was strongly dependent on the interface properties. The crack growth behavior of the composites changes from stable to unstable manners with increasing silane coupling agent. Unstable fracture occurs in the case of high concentration of silane coupling agent. If the crack reaches a tougher region, it slows down until the stored elastic energy becomes sufficient to propagate the crack through the tougher region. The reason for forming tougher region in composites is that different kinds of silane coupling agent used for treating glass fibres can change the chemical structure of vinylester resin.

Bare glass fibres were exposed on stable fracture surface without resin. The characteristics of fracture surface will change, when the crack propagation changes from stable to unstable. Some resin adhere on glass fibers and the proportion of resin adhered to the surface rapidly increases with increasing crack growth. The whole fracture surface was covered by resin and no glass fiber strand was found on the surface. This corresponds to unstable fracture.

1997 年 10 月 12 日收到初稿; 1998 年 7 月 23 日收到修改稿。

本文联系人: 董雁瑾, 北京市 100080, 中国科学院力学研究所非线性连续介质力学开放研究实验室

* To whom correspondence should be addressed

KEY WORDS interface properties, mode I fracture toughness, crack growth, stable manner, unstable manner

制造印刷线路板的纤维或织物增强的复合材料, 温度变化常引起分层破坏或玻璃纤维与树脂基体脱粘, 因此热阻抗是影响其力学性能的关键因素. 为了改善热阻抗性能, 常用有机硅烷偶联剂处理玻璃纤维. 因此, 必须进行层间界面力学性能的测试^[1,2], 考察有机硅烷偶联剂对热阻抗的影响.

目前, 估算界面性能的实验技术有单纤维复合材料实验^[3,4]、短梁剪切实验^[5]、层间断裂韧性实验^[6~8]等等. 与复合材料界面脱粘及分层破坏关系最密切的是层间断裂韧性, 迄今为止还没有统一的衡量标准, 致使有关实验结果缺少可比性. 为此, 国际复合材料界面科学协会(SIMS)组织了一个全球性的实验测试—“Round Robin Test”, 测试 I 型、II 型层间断裂韧性, 实验选用制备印刷线路板用的不同偶联剂处理的玻璃纤维增强聚乙烯基复合材料, 以制定这种性能测试的共同规范. 中国科学院力学研究所非线性连续介质力学开放研究实验室作为全球二十家测试单位之一参加了 I 型层间断裂韧性的测试工作. 有关实验结果已被 SIMS 采用.

1 实验方法

1.1 试样几何

材料为四种成分或浓度不同的硅烷偶联剂处理的玻璃纤维增强聚乙烯基复合材料(表 1), 均由国际复合材料界面科学协会提供. 采用双悬臂梁(DCB)试样(图 1)进行实验, 试样一端的中间层埋有 60mm 长的聚四氟乙烯塑料薄膜. 载荷通过 25mm 宽的铰链传递到试样上, 铰链用 Alteco 环氧胶粘接在试样上, 粘接方位如图 1 所示.

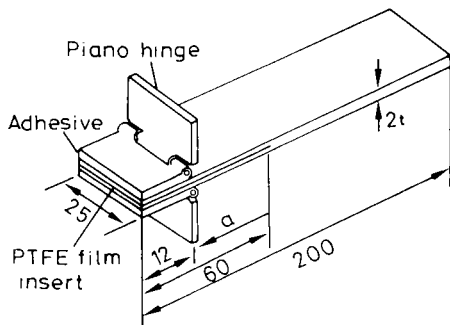


图 1 双悬臂梁试样示意图

Fig.1 Double cantilever beam test specimen (DCB)

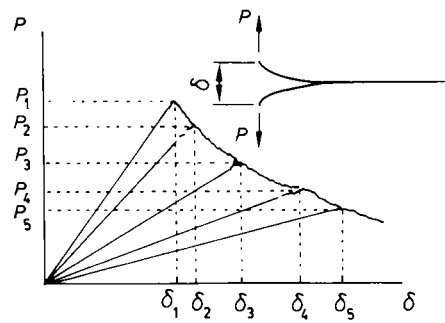


图 2 典型的层间断裂韧性试验载荷 - 位移曲线

Fig.2 The typical $P-\delta$ curve of the interlaminar fracture toughness test

表 1 试样切割方向及断裂韧性

Table 1 The cutting direction and the fracture toughness of specimens

Type of silane	Concentration /mg g ⁻¹	Serial number of specimens	Cutting direction	Average fracture toughness X/N·m ⁻¹
Methyl silane	0.1	RM01X	Warp	691.94
Methyl silane	4	RM04X	Warp	400.12
Methyl silane	10	RM10X	Weft	720.63
Epoxy silane	4	RE04X	Weft	667.89

1.2 实验过程

静态 DCB 实验在 MTS 810 Test Star 材料实验机上进行. 位移控制, 以 2mm·min⁻¹ 的加载速率加载. 用光学显微镜跟踪观察裂纹扩展前沿. 裂纹每次扩展 ~10mm 后卸载, 直至裂纹总长度达到 ~130mm, 记录载荷 - 加载点位移曲线. 加载前测量并记录裂纹长度 a_i , 加载后记录载荷 - 加载点位移曲线 (图 2) 上最高点所对应的裂纹扩展临界载荷 P_i , 加载点位移 δ_i .

I 型层间断裂韧性 G_{IC} (N·m⁻¹) 按照式 (1) 计算:

$$G_{IC} = nP\delta(2wa)^{-1} \times 10^{-3} \quad (1)$$

$$\delta \cdot P^{-1} = ma^n \quad (2)$$

其中 n 是由试验确定的试样柔度曲线的柔度系数, 与裂纹长度有关, δ 是与临界点对应的位移量 (mm), w 是试样宽度 (mm), a 是裂纹总长度 (mm). 单个试样及 n 个试样断裂韧性的算术平均值 \bar{x} 及 \bar{X} 分别为:

$$\bar{x} = k^{-1} \sum_{j=1}^k (G_{IC})_j \quad (3)$$

$$\bar{X} = J^{-1} \sum_{j=1}^J \bar{x}_j \quad (4)$$

其中 k 是单个试样的测量点数, J 是一组试样的个数. 测得的 n 值在 2.6~3.1 之间, 由双悬臂梁的理论分析, n 的理论值为 3.

2 结果与讨论

2.1 裂纹扩展

RM01X 的载荷 - 位移曲线 (图 3a) 表明, 进行第一个位移循环时, 裂纹快速失稳扩展, 所以载荷在达到裂纹扩展临界值后大幅度下降. 在随后的几个循环中, 裂纹都以慢速稳态扩展. 载荷随位移 (δ) 的增加逐渐减小. RM04X 和 RM10X 载荷 - 位移曲线 (图 3b、c) 特征与图 3a 不同, 循环次数明显减少, 裂纹基本呈非稳态扩展, 每个最高点均代表一个裂纹快速扩展的临界点, 显然, 这些点也是非稳态扩展的起点. RE04X 的裂纹在每一个循环中均以慢速稳态扩展, 载荷 - 位移曲线如图 3d 所示.

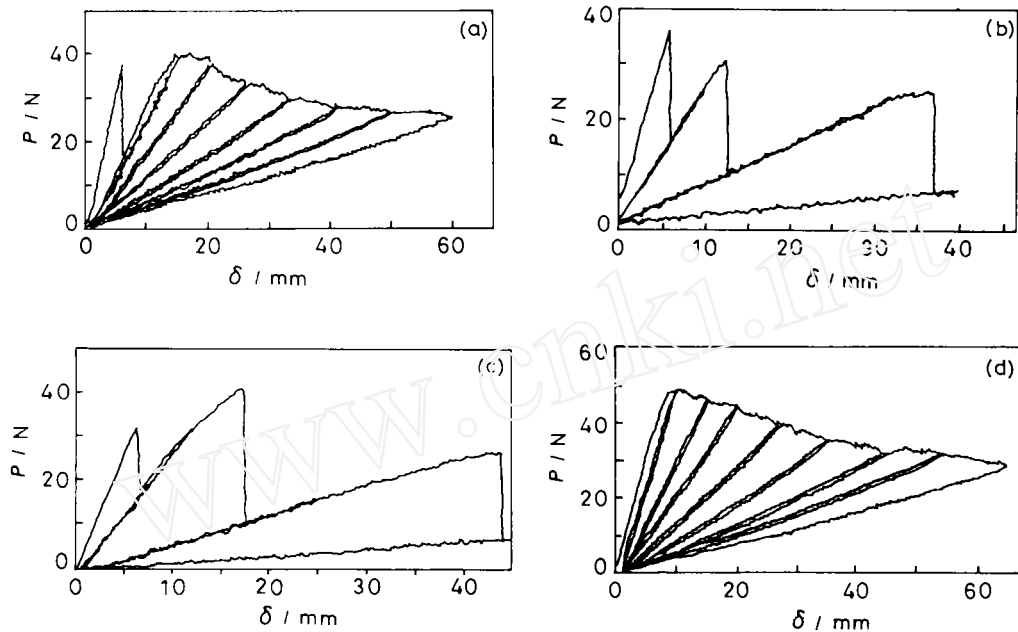


图 3 载荷 - 位移曲线

(a) $0.1\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 甲基硅烷处理; (b) $4\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 甲基硅烷处理;
(c) $10\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 甲基硅烷处理; (d) $4\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 环氧硅烷处理

Fig.3 The load vs displacement curves

总之, 随着偶联剂浓度的增加, 这类材料的裂纹扩展从稳态向非稳态方式转变. 纤维桥接只发生在环氧硅烷处理的试样中, 基本不影响其断裂行为.

2.2 断裂韧性

试样的 I 型层间断裂韧性与裂纹长度的关系 (图 4) 表明: 当初始裂纹扩展时, 断裂韧性值随之增加, 并逐渐趋于平台值, 这与裂纹的稳态扩展相对应. 对于裂纹失稳扩展的试样, 由于可供计算的点较少, 因此其断裂韧性值没有呈现出明显的分布规律. 图 4 中的空心点是由第一个或初始几个循环的数据计算得到的, 由于前几个循环受预埋薄膜的影响, 不是有效的. 每组试样断裂韧性的算术平均值列在表 1 中. 可见, RM4X 的断裂韧性值低于 RMO1X 的. 这与 Kotaki 等人的结果一致^[1,2,6], 他们认为随着这类偶联剂浓度的增加, 材料的断裂韧性呈下降趋势. 沿纬向切割的 RM10X 试样, 其断裂韧性值明显高于前两者. 由于缺少对比试验, 试样切割方向对断裂韧性的影响尚难定论.

2.3 断面观察

RMO1X 的裂纹扩展量 Δa 为 $\sim 20\text{mm}$ 时, 其微观形貌 (图 5) 显示断面有两个明显的区域. 与裂纹的非稳态扩展相对应的区域覆盖着树脂基体, 与稳态扩展相对应的区域有裸露的玻璃纤维, 有少量的玻璃纤维断裂. 二区域间有明显的分界线.

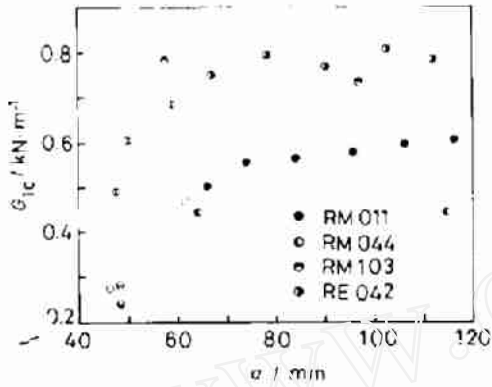


图 4 I 型断裂韧性与裂纹长度的关系

Fig.4 The relation between the value of mode I fracture toughness and crack length



图 5 $0.1\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 甲基硅烷处理的试样之断面形貌

Fig.5 The microstructures of methyl silane $0.1\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ finished specimen

在裂纹扩展量 Δa 为 $\sim 60\text{mm}$ 时, RMO4X 的断面形貌 (图 6) 显示: 每次循环中当载荷接近或达到最大值时, 首先发生非常少量的稳态扩展, 与之对应的微观形态是玻璃纤维织物上粘附有部分树脂基体 (图 6a), 树脂基体的面积随着裂纹扩展的加速而迅速增加, 每一循环的中后部分都完全被树脂覆盖 (图 6b)。这意味着一旦非稳态扩展发生, 裂纹就沿着两层纤维间的树脂扩展。

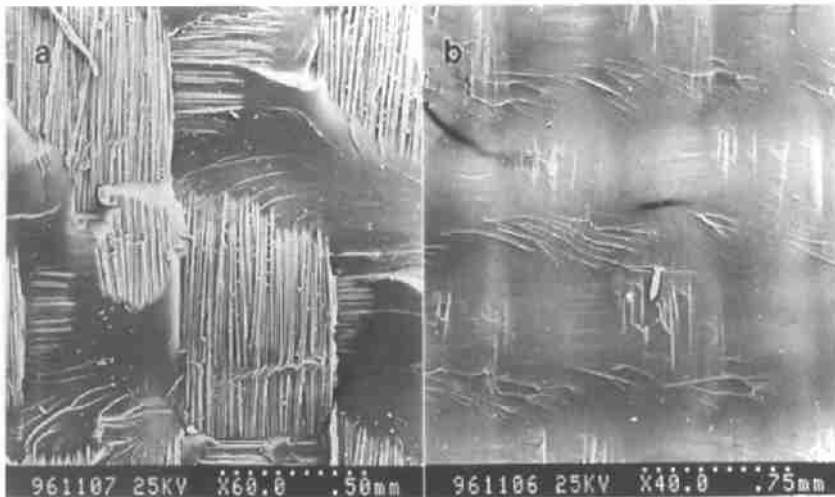


图 6 $4\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 甲基硅烷处理的试样之断面形貌

Fig.6 The microstructures of methyl silane $4\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ finished specimen

Hine 等人^[9]认为,非稳态裂纹扩展是由高韧性区域引起的.如果裂纹扩展到韧性高的区域,便会减慢扩展速度,直到弹性储能大到足以使裂纹穿过高韧性区域.这时弹性储能远远高于稳态扩展所需的能量. Ikuta 等人^[10]测量了经硅烷处理后的玻璃纤维周围的聚乙烯树脂的化学结构,认为在裂纹扩展平面上,因为硅烷偶联剂的影响而形成了一些高韧性的区域,导致裂纹非稳态扩展的发生.

RM10X 的断口特征基本与 RM04X 一样.

在每一次非稳态扩展发生之前总有小量的稳态扩展.用环氧硅烷处理的试样断口形貌(图7)显示,整个断面都是裸露的玻璃纤维,这类试样发生了纤维桥接现象,桥接后的断口上可以观察到明显的两层织物,没有粘附任何树脂,这种桥接基本不影响材料的断裂行为.

3 结 论

1. 玻璃纤维增强聚乙烯基复合材料的 I 型层间断裂行为与界面性能密切相关,分层方式随着甲基硅烷偶联剂浓度的增加而从稳态扩展向非稳态扩展过渡.非稳态扩展总是发生在韧性较高的区域.

2. 稳态扩展对应的断面是完全裸露的玻璃纤维,没有粘附任何树脂.当裂纹从稳态扩展向非稳态扩展过渡时,断面上粘附的树脂基体逐渐取代完全裸露的玻璃纤维.



图 7 $4\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 环氧硅烷处理的试样之断面形貌

Fig.7 The microstructures of epoxy silane $4\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ finished specimen

参 考 文 献

- 1 Kotaki, H. Hamada, *Proc. 4th Japan Int. SAMPE Symp.* (1995) p.1037
- 2 Kotaki, Y. Hirai, H. Hamada, *Proc. 4th Japan Int. SAMPE Symp.* (1995) p.1026
- 3 Ohsawa, A. Nakayama, M. Mia., *J. Appl. Poly. Sci.* **22**, 3202(1978)
- 4 P.S.Chua, M.R.Piggott, *Compos. Sci. Technol.* **22**, 33(1987)
- 5 Norita, J. Matsui, H.S.Matsui, *Composite Interfaces*, 213(1986)
- 6 Kotaki, M.Hojo, N. Tsujioka., *Proc. 4th Japan Int. SAMPE Symp.* (1995) p.1008
- 7 Whitney J.M., Browning C.E., Hoogsteden W., *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, **1**, 297(1982)
- 8 Johnson W.S. Mangaliri P.D., *J. of Compos. Technol. & Res.* **9**(1), 10(1987)
- 9 Hine, B.Brew, R. A.Duckett., *Compos. Sci. Technol.* **35**, 31(1989)
- 10 Ikuta, Y. Suzuki, Z.Maekawa., *Polymer*, **34**, 2445(1993)