面向高速铺放预浸料层间粘结性能研究

周煦洁,肖军^{*},李勇,还大军,许爱华 南京航空航天大学 材料科学与技术学院、江苏 南京 210016

摘 要:为了研究自动铺放过程中预浸料层间粘结性能与铺放工艺的关系,自行设计了一套模拟高速铺放过程的预浸料 粘结性能测试系统,采用自动铺放和剥离实验分开进行的"两步法"作为粘结性能的测试方法。利用该测试方法研究了 COF300/BA9916-2 环氧树脂预浸料的自动铺放粘结性能工艺特性,采用单因素实验,研究了不同铺放工艺参数对预浸料层间 粘结性能的影响规律,并运用正交实验,确定了各铺放工艺参数对预浸料层间粘结性能的影响程度。实验结果表明,预浸 料层间粘结性能随着铺放压力和铺放温度的增大而增大,随着铺放速度的增大而减小。铺放温度对预浸料层间粘结性能影 响最为显著,其次为铺放压力,铺放速度影响最小。

关键词:自动铺放,预浸料,粘结性能,剥离实验,铺放工艺参数

中图分类号: V258; TB332 文献标识码: A 文章编号: 1007-5453 (2016) 11-0012-07

先进树脂基复合材料具有高比强度、高比模量、耐腐蚀、抗疲劳性好、可设计性强、结构尺寸稳定性好、易于大面积整体成型等优势,在航空航天领域得到了广泛应用^[1]。自动铺放技术将材料、结构设计和制造连为一体,高度集成了数控机床技术、材料工艺技术和计算机辅助设计/计算机辅助制造(CAD/CAM)软件技术,实现了预浸料的自动铺放、压实、剪切和重送等加工能力^[2]。由于预浸料具有减少铺贴成本、提高质量和减少废品率的优势^[3],近年来得到了快速发展。

预浸料是自动铺放过程中所使用的材料,是由连续增强纤维浸渍基体树脂制成的组合物^[4]。预浸料的粘结性能是指预浸料自身或与模具可粘贴的能力^[5]。在自动铺放过程中,预浸料层间粘结性能是一项重要指标,其决定了该种预浸料是否适合用于自动铺放,合适的粘结性能保证预浸料既容易铺贴在模具或上一铺层表面,又容易去除辅助材料(如聚乙烯薄膜/背衬纸),当铺层有误时,可进行剥离且不影响重新铺放^[6]。因此,测定预浸料层间的粘结性能对自动铺放过程中工艺参数的选择具有指导意义。

国内外学者均对预浸料粘结性能的测试装置和测试方法进行了探索,主要的定量测试方法有压/拉试验法^[7]、探针试验法^[8] 和剥离试验法^[9]。Crossley^[10-15] 和陆楠楠^[16] 等针

对自动铺放,提出了一种模拟自动铺放逆过程的实验方法,根据心轴剥离测试机理^[17],设计了预浸料粘结性能和刚度测试装置,如图 1 所示,利用该装置可以同时得到预浸料的刚度值和粘结性能值。通过大量实验,研究了温度、压力、速度等对粘结性能的影响与机理,但由于实验中铺放速度受到拉伸试验机最大试验速度(10mm/s)的限制,远低于自动铺放过程中的铺放速度,实验结果难以直接应用到自动铺放

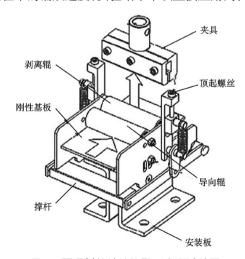


图 1 预浸料粘结性能和刚度测试装置 Fig.1 Prepreg tack and stiffness test rig

收稿日期: 2016-07-13; 录用日期: 2016-08-29

基金项目: 国家重点基础研究发展计划 (973 计划) (2014CB046501); 江苏高校优势学科建设工程资助项目

引用格式: ZHOU Xujie, XIAO Jun, LI Yong, et al. Experimental research on prepreg tack between layers based on high-velocity automated placement process [J]. Aeronautical Science & Technology, 2016, 27 (11): 12-18. 周煦洁,肖军,李勇,等. 面向高速铺放预浸料层间粘结性能研究 [J]. 航空科学技术, 2016, 27 (11): 12-18.

工艺。Brooks J R 等 [18] 和孙容磊等 [19] 模拟铺带头,设计了自动铺放工艺实验平台,如图 2 所示,采用将自动铺放过程和剥离过程分开进行的"两步法"进行粘结性能测试。在该实验平台上完成预浸料在一定工艺参数下的铺放过程,然后将预浸料叠层置于拉伸试验机上进行剥离实验,以平均剥离力(或分离能)表征预浸料的粘结性能,通过实验研究了不同铺放工艺参数对预浸料粘结性能的影响。

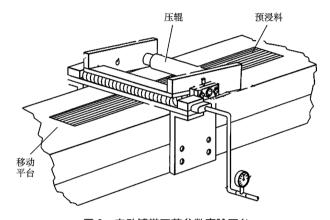


图 2 自动铺带工艺参数实验平台

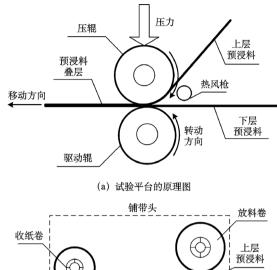
Fig.2 Processing parameter test platform for automated tape laying

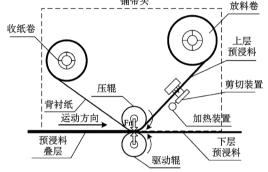
由于自动铺放技术多用于加工大型复合材料构件,加工周期长,因此,预浸料在铺放环境中放置时间较长,而预浸料层间粘结性能与预浸料在铺放环境中的放置时间、环境温度和湿度等有关,有必要通过现场测试,快速确定不同状态下预浸料的工艺窗口。为满足上述需求,本文自行设计了一套既可作为试验平台单独应用又可以与铺带机配套应用的高速铺放预浸料粘结性能测试系统,对适用于自动铺放的热固性单向预浸料进行测试,以研究铺放压力、铺放速度和铺放温度对预浸料层间粘结性能的影响,确定各铺放工艺参数对粘结性能的影响程度。

1 预浸料粘结性能测试系统与测试原理

为了测量自动铺放过程中预浸料层间粘结性能,使之符合大型复合材料构件自动铺放对高效的要求,本文采用自动铺放和剥离实验分开进行的"两步法"原理进行粘结性能的测试。所谓"两步法"即预浸料层间粘结性能测试过程分为2步:第一步为在一定铺放温度、铺放压力和铺放速度下完成预浸料的铺叠,即自动铺放过程;第二步为预浸料叠层的剥离试验。

自动铺放过程在自行设计的高速铺放预浸料粘结性能 测试系统上完成。该测试系统不仅可以作为试验平台单独 应用,以研究铺放工艺参数对预浸料层间粘结性能的影响, 而且可与铺带机配套使用进行现场测试。测试系统的实验 原理如图 3 所示。





(b) 试验平台与铺带头结合使用时的原理图

图 3 高速铺放预浸料粘结性能测试原理图 Fig.3 Schematic diagram of the prepreg tack test based on high-velocity automated placement process

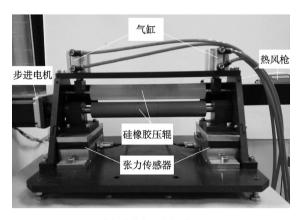
当单独作为试验平台进行测试时,其基本工作原理如图 3(a) 所示,两层覆有背衬纸的预浸料经过加热管吹出的热风加热后,在 2 个相对滚动且相互挤压的硅橡胶辊之间铺叠、压实,并利用背衬纸与压辊之间的摩擦力不断向前移动,完成两层预浸料的铺放过程。

当与铺带机配套使用时,只需将测试系统中的被动压 辊拆除,装置剩余部分与铺带头相结合,此时铺带头的压辊 成为被动压辊并提供铺放压力,铺带头的加热系统控制铺放 温度,测试系统中的主动辊提供铺放速度,工作原理与试验 平台单独使用时基本相同,如图 3 (b) 所示。

基于以上设计理念,完成了高速铺放预浸料粘结性能测试系统的设计与加工,如图 4 (a) 所示,包括主体部分、导料部分、加热系统和控制系统。其中,主体部分用于完成预浸料叠层的铺放,如图 4 (b) 所示,导料部分用于传送预浸料,避免预浸料发生偏斜,加热系统用于调节加热温度,控制系统用于控制铺放速度和铺放压力。



(a) 测试系统的实物图



(b) 主体部分的细节图

图 4 测试系统实物图及主体部分细节图

Fig.4 Physical map of the test system and detailed drawing of the main part

预浸料粘结性能测试系统的主体部分如图 4 (b) 所示,包括速度控制部分、温度控制部分和压力控制部分,分别用于控制自动铺放过程中的铺放速度、铺放温度和铺放压力。

铺放速度由步进电机带动的主动硅橡胶辊的转动提供,步进电机的转速由可编程逻辑控制器 (PLC) 控制,可在 0~600mm·s⁻ 的范围内调节;铺放温度由热风机吹出的热风提供,热风通过强制热对流对预浸料表面进行加热,调节热风温度可使预浸料温度在 25~55℃的范围内调节;铺放压力由与气缸连接的被动硅橡胶辊施加,通过调压阀调节气缸进气量以改变铺放压力,使其在 1~5N·mm⁻ 的范围内调节。硅橡胶辊的长度为 300mm,直径为 45mm。

剥离实验在拉伸试验机上完成,对自动铺放后的预浸料叠层进行 T 剥离,剥离方法参考胶黏剂的 T 剥离^[20], T 剥离是一种 180°剥离形式,剥离过程如图 5 所示,以平均剥离力表征预浸料层间粘结性能。

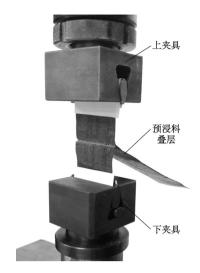


图 5 T 剥离过程 Fig.5 Process of T peel

2 材料与实验

实验所采用的预浸料为中航复合材料有限责任公司提供的 CCF300/BA9916-2 增韧环氧树脂预浸料。

实验时,将预浸料剪裁成尺寸为 50mm×200mm 的试样,在每个预浸料试样一端 80mm 处覆盖背衬纸,以便剥离时两层预浸料的分离,且容易固定在剥离夹具上。

在高速铺放预浸料粘结性能测试系统上设置铺放工艺参数,将两层预浸料试样进行铺放,随后将预浸料叠层在三思公司提供的5105型万能试验机上进行T剥离试验,得到剥离力-位移曲线,典型的剥离力-位移曲线如图6所示,以平均剥离力表征预浸料层间粘结性能的大小,计算单位为N·(50mm)-1。

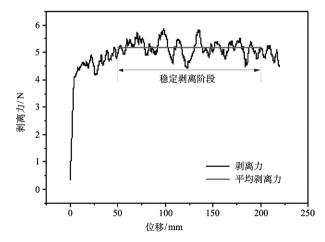


图 6 典型的剥离力 – 位移曲线 Fig.6 Typical peel force- displacement curve

为了增大剥离力测量结果的可靠性,每种工艺参数组 合重复进行6次实验,取其平均值来表征该种铺放工艺参数 组合下的预浸料层间粘结性能。

采用上述实验方法,通过单因素实验研究各铺放工艺参数(铺放压力、铺放速度和铺放温度)对预浸料层间粘结性能的影响规律,进而采用正交实验判断各工艺参数对预浸料层间粘结性能的影响程度。

实验过程中,控制实验室环境温度为 $25 C \pm 2 C$,相对 湿度为 $60\% \pm 5\%$ 。

3 结果与讨论

3.1 单因素实验

采用单因素实验方法进行实验时,只有一个工艺参数 变化,其余工艺参数固定。实验工艺参数设置如表1所示。

表 1 实验工艺参数表
Table 1 Experimental processing parameters

铺放温度	铺放速度	铺放压力	剥离速度
/℃	/ (mm·s ⁻¹)	/ (N·mm ⁻¹)	/ (mm·min ⁻¹)
40	100	3	100

3.1.1 铺放压力对层间粘结性能的影响

在单因素实验中,测量铺放压力在 1~5N·mm⁻¹ 范围内变化时预浸料间的剥离力,其他参数按照表 1 设置。铺放压力对预浸料层间粘结性能的影响如图 7 所示。

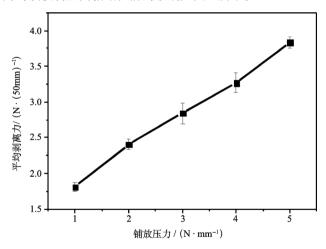


图 7 预浸料间剥离力随铺放压力的变化

Fig.7 Peel force between prepreg layers versus increasing layup pressure

由图 7 可以看出,随着铺放压力的增大,预浸料间的剥离力增大,即预浸料层间粘结性能增大。这是因为树脂在预浸料粘结过程中起到粘合剂的作用,而预浸料表面的树脂分布不均匀,树脂在预浸料表面形成不规则的凸起,预浸料表面树脂分布情况如图 8 所示。在压辊的压力作用下,树脂发生流动,浸润纤维,增大了预浸料间的粘合面积,粘结性能

增大。当铺放压力增大时,一方面压辊对预浸料的作用力增大,有利于树脂在预浸料层间的挤压流动,预浸料层间粘合面积增大,另一方面,铺放压力增大使得压辊变形增大,导致压辊对预浸料的施压时间变长,树脂流动更充分,预浸料层间粘合面积增大。因此,预浸料层间粘结性能随着铺放压力的增大而增大。

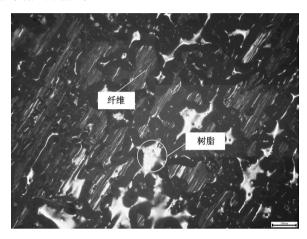


图 8 预浸料表面形貌 Fig.8 Photo of prepreg surface

3.1.2 铺放速度对层间粘结性能的影响

在单因素实验中,测量铺放速度在 10~600mm·s⁻¹ 范围 内变化时预浸料间的剥离力,其他参数按照表 1 设置。铺放 速度对预浸料层间粘结性能的影响如图 9 所示。

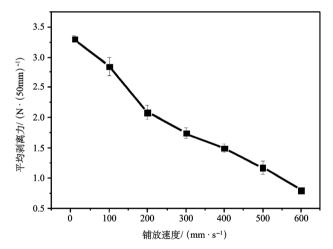


图 9 预浸料间剥离力随铺放速度的变化

Fig.9 Peel force between prepreg layers versus increasing layup velocity

由图 9 可以看出,随着铺放速度的增大,预浸料间的剥离力减小,即预浸料层间粘结性能减小。这是因为当铺放速度增大时,压辊对预浸料的施压时间变短,使得预浸料层间树脂流动浸润时间缩短,预浸料间粘合面积减小,从而预浸

料层间粘结性能减小。

3.1.3 铺放温度对层间粘结性能的影响

在单因素实验中,测量铺放温度在30~55℃范围内变化时预浸料间的剥离力,其他参数按照表1设置。铺放温度对预浸料层间粘结性能的影响如图10所示。

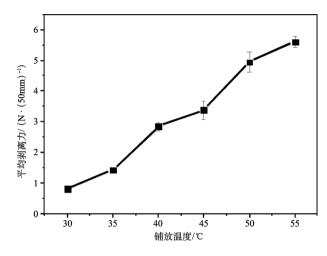


图 10 预浸料间剥离力随铺放温度的变化

Fig.10 Peel force between prepreg layers versus increasing lay-up temperature

由图 10 可以看出,预浸料间的剥离力随着铺放温度的升高而增大,即预浸料层间粘结性能增大。这是因为自动铺放温度处于树脂玻璃化转变温度 $T_g \sim T_g + 100$ \mathbb{C} 之间,树脂基体黏度与温度的关系可用 Williams-Landel-Ferry 半经验方程 (简称 WLF 方程) 来描述 [21]:

$$\lg a_T = \lg \frac{\mu(T)}{\mu(T_0)} = -\frac{C_1(T - T_0)}{C_2 + (T - T_0)} \tag{1}$$

式中: a_T 为移动因子; C_1 , C_2 为常数;T为预浸料温度; T_0 为参考温度; $\mu(T)$, $\mu(T_0)$ 分别为温度T, T_0 时的树脂黏度。

由式 (1) 可知,当预浸料温度 T升高时,树脂黏度 μ (T) 降低,这有利于树脂在预浸料间的流动浸润,使得层间粘合面积增大,从而预浸料层间粘结性能增大。

3.2 正交实验

通过对单因素实验结果的分析,确定了各铺放工艺参数对预浸料层间粘结性能的影响规律,为确定各铺放工艺参数影响的显著水平进行正交实验研究。

综合单因素实验结果,选取3个因素,分别为铺放温度(A)、铺放速度(B)和铺放压力(C),不考虑各因素间的交互作用,每个因素选定4个水平,分别编号1、2、3、4,实验因素水平如表2所示。

设计正交实验为 3 因素 4 水平,选用正交表 L16 (4⁵) 适宜,包含两列空列作为误差列,根据正交表的实验方案进行实验,实验结果和极差分析如表 3 所示。

表 2 预浸料层间粘结性能实验因素水平表 Table 2 Factors and levels of prepreg tack between layers experiment

	因素			
水平 -	A	В	С	
	铺放温度 /℃	铺放速度 / (mm·s ⁻¹)	铺放压力 / (N·mm ⁻¹)	
1	30	100	2	
2	35	200	3	
3	40	300	4	
4	45	400	5	

表 3 正交实验结果分析表 Table 3 Analysis of Orthogonal test results

		•	•	
实验 — 序号	A	В	С	平均剥离力 / (N·(50mm) ⁻¹)
	铺放温度 /℃	铺放速度 / (mm·s ⁻¹)	铺放压力 / (N·mm ⁻¹)	
1	30	100	2	0.56
2	30	200	3	0.42
3	30	300	4	0.45
4	30	400	5	0.56
5	35	100	3	1.42
6	35	200	2	0.97
7	35	300	5	1.80
8	35	400	4	1.57
9	40	100	4	3.27
10	40	200	5	2.86
11	40	300	2	1.69
12	40	400	3	1.49
13	45	100	5	3.15
14	45	200	4	3.36
15	45	300	3	4.09
16	45	400	2	3.49
k_1	0.497	2.100	1.677	_
k_2	1.440	1.902	1.855	_
k_3	2.328	2.007	2.163	_
k_4	3.522	1.778	2.093	_
R	3.025	0.322	0.486	_
主次顺序			A>C>B	

在正交实验结果分析表中, k_i 表示各因素在同一水平时的粘结性能平均值,极差 R 表示该因素在不同水平下粘结性能变化的幅度,R 越大,表示该因素的水平对粘结性能的影响越大。由表 3 可知, $R_A > R_C > R_B$,因此,铺放温度对预浸料层间粘结性能的影响最大,其次为铺放压力的影响,铺放速度的影响最小。

在实际铺放过程中,铺放速度随铺放情况的变化而不

断变化,为保证良好的铺贴,应根据铺放速度的改变调节铺放温度或铺放压力。根据正交实验结果可知,若铺放速度增大,应适当增大铺放温度或者铺放压力,反之亦然。

4 结论

综上研究,得出以下结论:

- (1)本文自行设计了高速铺放预浸料粘结性能测试系统,采用自动铺放过程和剥离过程分开进行的"两步法"进行测试,以平均剥离力表征预浸料层间粘结性能,为自动铺放过程中预浸料粘结性能的研究提供了定量分析的新方法。
- (2) 通过单因素实验,测试了 CCF300/BA9916-2 增韧环氧树脂预浸料在不同铺放工艺参数下的层间粘结性能,实验结果表明,在实验范围内,预浸料层间粘结性能随铺放温度和铺放压力的增大而增大,随铺放速度的增大而减小。
- (3) 通过正交实验得到,预浸料层间粘结性能受铺放温度的影响最为显著,其次为铺放压力,铺放速度影响最小。
- (4) 在自动铺放过程中,为保证良好铺贴,应根据铺放速度的增大或减小,适当增大或减小铺放温度和铺放压力。

'AST

参考文献

- [1] 黄晓艳,刘波.战机用先进树脂基复合材料的应用现状 [J]. 材料研究与应用,2011,05(4);243-248.
 - HUANG Xiaoyan, LIU Bo. Application of advanced resin matrix composites in battleplane [J]. Materials Research and Application, 2011, 05 (4): 243-248. (in Chinese)
- [2] 肖军,李勇,文立伟,等. 树脂基复合材料自动铺放技术进展[J]. 中国材料进展,2009,28(6):28-32.
 - XIAO Jun, LI Yong, WEN Liwei, et al. Progress of automated placement technology for polymer composites [J]. Materials China, 2009, 28 (6); 28-32. (in Chinese)
- [3] 沈真,张晓晶.复合材料飞机结构强度设计与验证概论 [M]. 上海:上海交通大学出版社,2011.
 - SHEN Zhen, ZHANG Xiaojing. An introduction to design and verification for composite aircraft structures [M]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University Press, 2011. (in Chinese)
- [4] 郭金树.复合材料件可制造性技术[M].北京: 航空工业出版 社,2009.
 - GUO Jinshu. Manufacturability techniques of composites parts [M]. Beijing: Aviation Industry Press, 2009. (in Chinese)

- [5] 陈祥宝.聚合物基复合材料手册[M].北京:化学工业出版社, 2004.
 - CHEN Xiangbao. Handbook of polymer matrix composites [M]. Beijing; Chemical Industry Press, 2004. (in Chinese)
- [6] 文琼华,王显峰,何思敏,等.温度对预浸料铺放效果的影响[J]. 航空学报,2011,32(9):1740-1745.
 - WEN Qionghua, WANG Xianfeng, HE Simin, et al. Influence of temperature on placement effect of prepreg [J]. Acta Aeronautica et Astronautica Sinica, 2011, 32 (9): 1740-1745. (in Chinese)
- [7] Ahn K J, Seferis J C, Pelton T, et al. Analysis and characterization of prepreg tack [J]. Polymer Composites, 1992, 13 (13): 197-206.
- [8] Dubois O, Cam J B L, Béakou A. Experimental analysis of prepreg tack [J]. Experimental Mechanics, 2009, 50 (5): 599-606.
- [9] Banks R, Mouritz A P, John S, et al. Development of a new structural prepreg: characterisation of handling, drape and tack properties [J]. Composite Structures, 2004, 66 (1-4): 169-174.
- [10] Crossley R J, Schubel P J, Warrior N A. The experimental characterization of prepreg tack[C]//The 17th International Conference on Composite Materials (ICCM-17), 2009.
- [11] Crossley R J, Schubel P J, Warrior N A. Automated tape lay-up (ATL) of wind energy grade materials[C]//Proc. Conf. EWEC, 2010.
- [12] Crossley R J, Schubel P J, Warrior N A. Development of ATL and materials for low cost production[C]//The 18th International Conference on Composite Materials, 2011.
- [13] Crossley R J, Schubel P J, Warrior N A. Experimental determination and control of prepreg tack for automated manufacture [J]. Plastics, Rubber and Composites, 2011, 40 (6/7): 363-368.
- [14] Crossley R J, Schubel P J, Warrior N A. The experimental determination of prepreg tack and dynamic stiffness [J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2012, 43 (3): 423-434.
- [15] Crossley J. The characterization of tack for automated tape laying [D]. University of Nottingham, 2011.
- [16] 陆楠楠,肖军,齐俊伟,等. 面向自动铺放的预浸料动态黏性实验研究 [J]. 航空学报, 2014, 35 (1): 279-286.

 LU Nannan, XIAO Jun, QI Junwei, et al. Experimental

- research on prepreg dynamic tack based on automated placement process [J]. Acta Aeronautica et Astronautica Sinica, 2014, 35 (1): 279-286. (in Chinese)
- [17] Williams J A, Kauzlarich J J. Energy and force distributions during mandrel peeling of a flexible tape with a pressure-sensitive adhesive [J]. Journal of Adhesion Science and Technology, 2006, 20 (7): 661-676.
- [18] Brooks J R, Platt P R. Method and apparatus to determine composite prepreg tack; US 5513537 A [P]. 1996.
- [19] 黄文宗, 孙容磊, 连海涛, 等. 预浸料的铺放适宜性评价 (一)——粘性篇 [J]. 玻璃钢 / 复合材料, 2013 (6); 3-11. HUANG Wenzong, SUN Ronglei, LIAN Haitao, et al. Assessment for placement suitability of prepreg: part of tack [J]. Fiber Reinforced Plastics/Composites, 2013 (6); 3-11. (in Chinese)

- [20] Standard A. Standard test method for peel resistance of adhesives [J]. Active Standard, 2008, 15 (06): 11-16.
- [21] 金日光,华幼卿. 高分子物理 [M]. 第三版. 北京: 化学工业出版社,2007; 205-208.
 - JIN Riguang, HUA Youqing. Polymer physics [M]. Third edition. Beijing; Chemical Industry Press, 2007; 205-208. (in Chinese)

作者简介

周煦洁(1990-) 女,硕士。主要研究方向:复合材料成型 新方法。

Tel: 025-84892980

E-mail: zhouxujie0610@163.com

肖军(1959-) 男,硕士,教授,博士生导师。主要研究方向:先进复合材料设计、制造及自动化装备技术研究。

Tel: 025-84892980 E-mail: j.xiao@nuaa.edu.cn

Experimental Research on Prepreg Tack between Layers Based on Highvelocity Automated Placement Process

ZHOU Xujie, XIAO Jun*, LI Yong, HUAN Dajun, XU Aihua

College of Material Science and Technology, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China

Abstract: To solve the problem of bonding suitability between adjacent prepreg layers in the automated placement process, a new test system for characterization of prepreg tack which simulates the automated placement process was designed. The test method called two-step method consisting of the automated placement and peeling test has been developed. To study the processing property of CCF300/BA9916-2 epoxy prepreg tack, single factor experiments were carried out to find the influence of the lay-up processing parameters on the prepreg tack. And orthogonal experiments were accomplished to confirm the impact of the lay-up processing parameters. The results showed that the prepreg tack increases along with the increase of lay-up pressure and lay-up temperature, and decreases with the increase of lay-up velocity. The impact of lay-up temperature on prepreg tack is most significant, followed by the impact of lay-up pressure, and the lay-up velocity has the minimum impact.

Key Words: automated placement; prepreg; tack; peeling test; lay-up processing parameters

Received: 2016-07-13; Accepted: 2016-08-29

Foundation item: The National Basic Research Program of China (973 Program) (2014CB046501); A Project Funded by the Priority Academic Program Development of Jiangsu Higher Education Institutions