复合材料学报 Acta Materiae Compositae Sinica
第26卷 第1期 2月 2009年
Vol. 26 No. 1 February 2009

文章编号：1000-3851(2009)01-0043-05

亚麻落麻纤维增强可降解复合材料的拉伸强度预测

王 瑞*，王春红
（天津工业大学 纺织学院，天津 300160）

摘 要： 采用非织造结合热压成型工艺制备了亚麻落麻纤维增强聚乳酸(PLA)基可降解复合材料(亚麻落麻/PLA)，研究了纤维体积分数对材料拉伸强度的影响，并利用 Kelly－Tyson 拉伸强度预测模型及相关修正理论，提出了非连续植物纤维增强可降解复合材料(D-NFRBC)强度预测模型，该模型考虑了纤维长度、取向角、直径、强度概率分布及材料界面剪切强度与材料中纤维临界长度、纤维极限拉伸强度三者间制约关系对复合材料强度的影响。结果表明：亚麻落麻/PLA 拉伸强度在纤维体积分数为 39.6%时达到最大，应用本文建立的强度预测模型所得亚麻落麻/PLA 拉伸强度预测值与实验值吻合良好。

关键词： 亚麻落麻纤维；可降解；复合材料；拉伸强度；预测
中图分类号： TB332；TQ327 **文献标志码：** A

Prediction of tensile strength of flax noil fibers reinforced biodegradable composite

WANG Rui*，WANG Chunhong
(School of Textile，Tianjin Polytechnic University，Tianjin 300160，China)

Abstract： Flax noil fibers reinforced polylactide composites were prepared by means of the non-woven method and hot pressing technology. The effects of volume fraction on tensile strength of the composites were discussed. Based on Kelly－Tyson tensile strength model and some related theories，a new model for predicting discontinuous natural fibers reinforced biodegradable composite (D－NFRBC) was proposed，which contains not only the effect of probability distributing features of the fibers strength，length，fibers tropism angle and diameter on the predicted strength，but also the effect of the restricted connection among the shear strength of the composite，the critical length of the fibers and the terminal tensile strength of the fibers in the composite on the strength. The results reveal that the tensile strengths reach a peak at the fiber volume fraction of 39.6%，and the predicted values calculated by the new model agree well with the experimental values.

Keywords： flax noil fibers；biodegradable；composite；tensile strength；prediction

植物纤维增强可降解复合材料(NFRBC)的开发具有重要的节能、环保意义，因此受到世界各国的普遍重视，并开展了相关研究，其中非连续植物纤维增强可降解复合材料(Discontinuous natural fibers reinforced biodegradable composite，简称 D-NFRBC)由于更具自动化生产及成本优势而成为 NFRBC 研究中的热点。在 D－NFRBC 研发领域，采用洋麻、剑麻、亚麻、大麻、苎麻、黄麻、竹原纤维、甘蔗渣纤维、小麦秸秆纤维、松树叶纤维与可降解树脂进行复合制备可降解复合材料的研究均有报道[1-10]。

目前报道探讨 D-NFRBC 制备工艺的较多，而预测 D－NFRBC 力学性能的很少且预测精度均较低，此外预测纤维含量超过材料起始劣化含量拉伸强度的研究尚未见报道；因此，本文中在考虑资源循环利用、节能环保的基础上，选用亚麻落麻为增强纤维，开发了亚麻落麻纤维增强聚乳酸基可降解复合材料(简称亚麻落麻/PLA)并研究了纤维体积分数对材料拉伸性能的影响。在 Kelly－Tyson 拉伸强度预测模型及相关修正理论的基础上建立了 D-NFRBC 拉伸强度预测模型，应用该模型对亚麻落麻/PLA 的拉伸强度进行了预测并分析了模型的预

收稿日期： 2008-01-21；**收修改稿日期：** 2008-04-24
基金项目： 教育部“高等学校博士学科点专向科研基金”(20050058002)
通讯作者： 王 瑞，教授，博士生导师，主要从事纺织复合材料的研究 E-mail：wangrui@tjpu.edu.cn

测精度。

1　实验部分

1.1　原材料

亚麻落麻纤维：平均强度、长度、直径分别为417.6 MPa、72 mm、63.9 μm；聚乳酸纤维：长度、直径分别为38 mm、13.3 μm。

1.2　复合材料的制备

在制备复合材料之前，首先采用非织造工艺制备了复合材料预成型件。预成型件的加工过程为：将亚麻落麻与聚乳酸纤维混合后经开松、给油、梳理制成混合纤网集合体后，将纤网依照最终材料尺寸进行裁切并叠层后制成复合材料预成型件。裁切后纤网中平行于纤网输出的方向被称为纵向(L)，平行于纤网幅宽的方向被称为横向(T)；在叠层过程中使用的是平行叠层法，即使纤网集合体纵向与纵向相重，横向与横向相重进行叠层，所叠层数由所制备复合材料的面密度确定，本实验中将复合材料的面密度设定为1400 g/m^2。

将预成型件置于塑料制品液压机(Y/TD71－45A型，天津液压机厂)中热压成复合材料，其中热压温度、时间和压力分别为190℃、20 min、12.5 MPa。

1.3　复合材料性能测试

对拉伸试样断口进行喷金，随后在电子显微镜(Quanta 200型，捷克FEI公司)下对断口形貌进行观察。

参考ASTM D3039/D3039M－00、GB 1447－83、GB/T 1040－92方法[11-13]使用万能强力机(INSTRON 3369型，美国英斯特朗)测试复合材料的拉伸性能，试验中将拉伸试验的速度设定为2 mm/min，试样尺寸为150 mm×20 mm×2 mm，其中矩形试样的两端通过粘贴厚约0.8 mm的铝片进行保护。每种材料有效拉伸试样的数量为5个，实验环境温度、湿度分别为25℃、65%。

依照GB 3357－82塑料层间剪切强度试验方法[14]测试了所制备复合材料的界面剪切强度，试样尺寸为20 mm×6 mm×2 mm，跨距长为10 mm，加载速度为2 mm/min，剪切试验中需注意：对于非层间剪切的试样应予以作废，补充新的试样以确保每种材料剪切试验的有效试样数量为10个，实验环境的温度、湿度分别为25℃、65%。

1.4　D-NFRBC拉伸强度的预测

D-NFRBC的拉伸强度与材料中植物纤维强度、长度、直径、取向角等指标的概率分布及D-NFRBC界面剪切强度与材料中纤维临界长度和纤维极限拉伸强度三者间的制约关系有关。本文作者在Garkhail报道中[15]Kelly－Tyson拉伸强度预测模型的基础上，结合Fukuda[16]、Pipes[17]的取向因子理论、Sanomura[18]的取向因子整合理论、植物纤维强度分布的Weibull分布理论及Goda[19]的材料界面剪切强度与材料中纤维临界长度及纤维极限拉伸强度三者之间的制约关系理论，建立了D-NFRBC拉伸强度预测模型：

$$\sigma_{cu} = C_{os}\eta_{ls}\sigma_{fu}V_f + \sigma_{mu}(1 - V_f)$$

式中：σ_{cu}、σ_{fu}、σ_{mu}分别为材料拉断时材料、纤维及基体的拉伸强度，其中σ_{mu}为20 MPa；V_f为纤维体积分数；C_{os}为反映纤维取向角分布对材料拉伸强度影响的取向因子；η_{ls}为反映纤维长度分布对材料拉伸强度影响的长度效应因子。其中

$$C_{os} = \frac{\sin\theta_o}{\theta_o}\frac{1}{\theta_o}\left(\frac{1}{12}\sin 3\theta_o + \frac{3}{4}\sin\theta_o\right)$$

式中θ_o为纤维取向角分布中的临界角，测试纤维取向角分布时因材料厚度较小，所以取向角测试过程中将材料视为二维，又因材料中纤维和基体的颜色可以较好区分，所以试验中在材料表面划定2 cm×2 cm面积统计纤维与受力方向的夹角，纤维取向角概率分布见图1(a)，由图中可以看出，取向角在0°～40°之间近似于矩形分布，可根据下式得出复合材料中纤维取向角与取向分布中临界角之间的关系式[16]：

$$g(\theta) = \begin{cases} \dfrac{1}{\theta_o} & (0 \leqslant \theta \leqslant \theta_o) \\ 0 & (\theta_o \leqslant \theta) \end{cases}$$

为了计算C_{os}的值，需要求解出θ_o的值，在计算θ_o的过程中需要引入取向系数f_p的表达式，即

$$f_p = 2\langle\cos^2\theta\rangle - 1$$

式中$\langle\cos^2\theta\rangle$既可以通过统计纤维取向角概率分布确定，即

$$\langle\cos^2\theta\rangle = \sum_i \frac{N(\theta_i)}{N_{total}}\cos^2\theta_i$$

又可以依据纤维取向角与取向分布中临界角之间的关系式确定，即

$$\langle\cos^2\theta\rangle = \int_0^{\pi/2} g(\theta)\cos^2\theta d\theta$$

根据纤维取向角概率分布及以上各式计算得出强度计算中取向因子的值为0.698。

σ_{cu}表达中长度效应因子η_{ls}与σ_{fu}之间有一定的

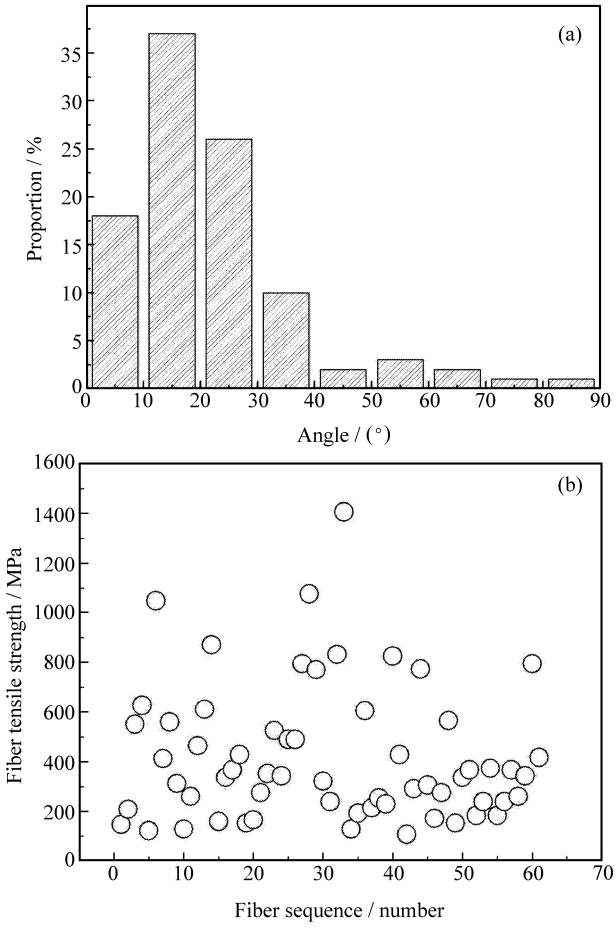

图 1　亚麻落麻在材料中取向角、梳理后亚麻落麻强度的概率分布

Fig. 1　Distribution of tropism angles of flax fibers in composite and fibers strength after carding

制约关系：

$$\eta_{ls}=\begin{cases}\sum_i (l_i/2l_c)p_i & (l<l_c)\\ \sum_j (l-l_c/2l_j)p_j & (l\geqslant l_c)\end{cases}$$

式中：i、j 分别为大于及小于临界长度的纤维长度区间；p_i、p_j 为长度分布频率，其中通过测试梳理后纤维长度的概率分布确定该式中 l_i、l_j、p_i、p_j 的值，具体的测试过程参考了 GB 5887－86[20]；材料中纤维的临界长度 l_c 为

$$l_c=\frac{\sigma_{fu}d_f}{2\tau_s}$$

式中：d_f 为根据纤维直径概率分布所得出的纤维直径平均值，经计算其值为 80 μm；τ_s 为材料界面剪切强度，见表 1；纤维的拉伸强度 σ_{fu} 为

$$\sigma_{fu}=\sigma_o\left(\frac{l_c}{l_o}\right)^{-1/\beta}\Gamma\left(1+\frac{1}{\beta}\right)$$

式中 σ_o、β 分别为纤维强度 Weibull 分布中的尺度参数和形状参数，根据图 1(b)的数据计算得出其值分别为 324.25 MPa、1.91。通过求解 σ_{fu}、l_c 的表达式最终可确定出 σ_{fu}、l_c 的值，代入 η_{ls} 的表达式中即可求得 η_{ls} 的值，即不同纤维含量的材料因界面剪切强度 τ_s 不同，其所对应的临界纤维 l_c、纤维极限拉伸强度 σ_{fu} 及纤维长度效应因子 η_{ls} 均有所不同。其具体数值见表 1。

2　结果与讨论

2.1　纤维含量对亚麻落麻/PLA 拉伸强度的影响

图 2 反映的是不同纤维含量对亚麻落麻/PLA 纵向拉伸强度的影响，由图 2 可见：纤维体积分数为 39.6%时亚麻落麻/PLA 的拉伸强度最高，此时材料的纵向拉伸强度为 33.31 MPa。而高于或低于该纤维含量，亚麻落麻/PLA 的拉伸强度均较低。其中纤维体积分数低于 39.6%的材料，其拉伸强度较低的主要原因在于材料中的亚麻落麻不能充分发挥增强作用；而纤维体积分数高于 39.6%的材料，其拉伸强度较低的主要原因在于材料中亚麻落麻过多致使 PLA 基体不能有效包覆黏合纤维，即因材料界面性能较差导致高纤维含量亚麻落麻/PLA 的力学性能较低。由表 1 可见，纤维体积分数超过 39.6%后，材料界面剪切强度急剧降低。

表 1　强度预测中所用数据、实验值及预测值

Table 1　Data for strength prediction, experimental values and predicted values

Composite sequence	V_f/%	Composite shear strength τ_s/MPa	Fiber critical length l_c/mm	Utmost fiber tensile strength σ_{fu}/MPa	Fiber length effect factor η_{ls}	Composite tensile strength/MPa	
						Experimental	Predicted
1	34.8	1.75	7.60	99.63	0.72	30.73	30.49
2	39.6	2.27	6.40	108.99	0.75	33.31	34.69
3	44.4	0.81	12.58	76.54	0.63	23.04	25.99
4	49.4	0.65	14.57	70.92	0.60	23.33	24.76

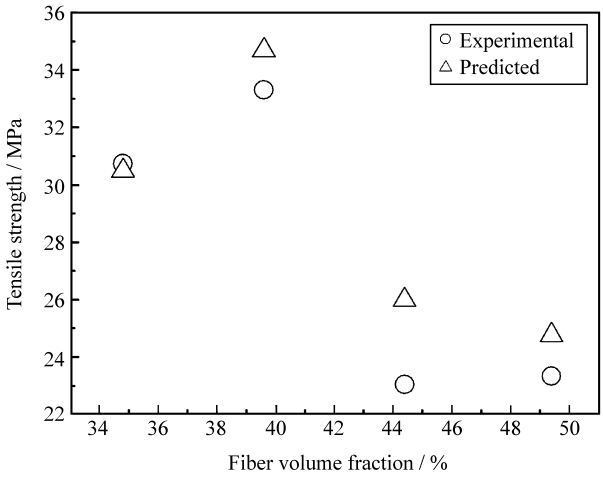

图 2　亚麻落麻/PLA 纵向拉伸强度的预测值与实验值对比

Fig. 2　Contrast of predicted and experimental values of longitudinal tensile strength of flax/PLA

2.2　亚麻落麻/PLA 拉伸断口 SEM

如图 3 所示：4 种亚麻落麻/PLA 中力学性能最优的材料(即纤维体积分数为 39.6%的材料)拉伸断口较平齐，且抽拔出的纤维上粘有一定量的树脂，说明该体积分数下亚麻落麻与 PLA 间的界面结合较好；但界面处有一定量的孔隙，说明亚麻落麻与 PLA 间的界面黏合强度还有进一步提高的可能。

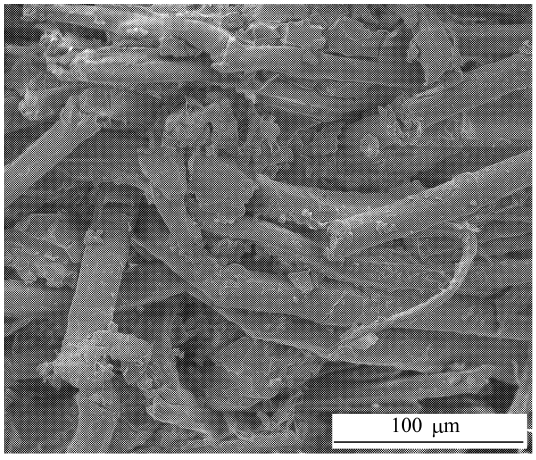

图 3　纤维体积分数为 39.6%亚麻落麻/PLA 拉伸断口 SEM

Fig. 3　SEM of 39.6% flax/PLA

分析亚麻落麻与 PLA 之间界面黏合强度较低的主要原因在于亚麻落麻与 PLA 之间极性差异性较大，所以需要通过碱处理、偶联剂处理等方法对亚麻落麻/PLA 的界面性能进行改进。

2.3　模型预测精度分析

为了定量表达使用本文中所建立的 D-NFRBC 强度预测模型对亚麻落麻/PLA 进行预测时所得预测值与实验值之间的拟合情况，使用相对残差 e_i、平均残差 $\bar{e}$ 和精度 p^0 的表示方法，其计算式如下：

$$e_i = \frac{y_i - \hat{y}_i}{y_i} \times 100\%,\ \bar{e} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} |e_i|,$$

$$p^0 = (100 - \bar{e})\%.$$

式中 y_i、$\hat{y}_i$ 分别为实验值和拟合值。

根据表 1 中的数据，由式(11)、式(12)计算得出模型预测亚麻落麻/PLA 拉伸强度时的预测精度约为 92.3%，较 Garkhail 等[15]预测亚麻/PP 拉伸强度时的精度高。本文中在预测模型中引入了材料界面剪切强度与材料中纤维临界长度及纤维极限拉伸强度三者间的制约关系，该模型可对纤维含量超过材料起始劣化含量的拉伸强度进行预测，且预测这类材料(即纤维体积分数为 44.4%、49.4%的材料)拉伸强度时的预测精度约为 90.6%。目前预测纤维含量超过材料起始劣化含量拉伸强度的研究尚未见报道，但笔者认为该预测工作很有意义，原因在于：目前所开发的 D-NFRBC，其成本大都因材料中可降解树脂的价格高于市场上所销售的植物纤维增强不可降解复合材料，相比之下 D-NFRBC 成本较高，但可降解树脂的价格远远高于植物纤维，所以在满足实际需要的前提下，提高 D-NFRBC 中植物纤维的含量意味着可降低 D-NFRBC 的成本，本文中使高纤维含量材料的力学性能具有可设计性和可预测性意味着可促进低成本 D-NFRBC 的开发，从而加速 D-NFRBC 的产业化进程。

3　结　论

(1) 纤维体积分数为 39.6%时亚麻落麻/PLA 的纵向拉伸强度最大，约为 33.31MPa。低于该纤维含量因亚麻落麻不能充分发挥增强作用而使材料力学性能降低，高于该纤维含量因界面性能较差而使材料力学性能降低。

(2) 观察拉伸强度最高的亚麻落麻/PLA 拉伸断面的 SEM 得出：亚麻落麻与 PLA 之间的界面结合较好；但界面处仍有一定的孔隙，说明亚麻落麻与 PLA 间的界面黏合强度还有进一步提高的可能。

(3) 使用所建立的 D-NFRBC 强度预测模型预测亚麻落麻/PLA 拉伸强度时预测精度约为 92.3%，预测值与实验值取得了较好的一致。此外使用本文中所建立的 D-NFRBC 强度预测模型可对纤维含量超过材料起始劣化含量材料的拉伸强度进

行预测，预测这类材料拉伸强度时的预测精度约为90.6%。

参考文献：

[1] Shibata Shinichi，Fukumoto Isao，Cao Yong. Effects of fiber compression and length distribution on the flexural properties of short kenaf fiber-reinforced biodegradable composites [J]. Polym Compos，2006，1002(10)：202-05.

[2] Shibata Shinichi，Fukumoto Isao. Prediction of flexural modulus of the biodegradable composites made from bamboo and kenaf fibers [J]. Key Engineering Materials，2007，334-335：53-56.

[3] 曹　勇，合田公一，吴义强. 洋麻纤维增强全降解复合材料的制备及其弯曲模量 [J]. 复合材料学报，2007，24(3)：28-34.
Cao Yong，Goda Koichi，Wu Yiqiang. Preparation and flexural modulus of biodegradable composites reinforced with kenaf fibers [J]. Acta Materiae Compositae Sinica，2007，24(3)：28-34.

[4] 曹　勇，柴田信一. 甘蔗渣的碱处理对其纤维增强全降解复合材料的影响 [J]. 复合材料学报，2006，23(3)：60-66.
Cao Yong，Shibata Shinichi. Effect of alkali treated bagasse fibres on fibre-reinforced biodegradable composite [J]. Acta Materiae Compositae Sinica，2006，23(3)：60-66.

[5] Mohanty A K，Wibowo A，Misra M，Drzal L T. Effect of process engineering on the performance of natural fiber reinforced cellulose acetate biocomposites [J]. Composites Part A，2004，35(3)：363-370.

[6] Alvarez V，Vazquez A，Bernal C. Effect of microstructure on the tensile and fracture properties of sisal fiber/starch-based composite [J]. Journal of Composite Materials，2006，40(1)：21-35.

[7] Averous L，Digabel F Le. Properties of biocomposites based on lignocellulosic fillers [J]. Carbohydrate Polymers，2006，66：480-493.

[8] Kim Eung Gu，Kim Beom Soo，Kim Dae Su. Physical properties and morphology of polycaprolactone/starch/pine-leaf composites [J]. Journal of Applied Polymer Science，2007，103：928-934.

[9] 万春杰，余剑英，南文唤，刘恩苒. 苎麻纤维增强复合材料的工艺与性能研究[J]. 化学与生物工程，2006，23(8)：18-20.
Wan Chunjie，Yu Jianying，Nan Wenhuan，Liu Enran. Study on processing and properties of ramie fibre reinforced poly (propylene carbonate) matrix composite materials [J]. Chemistry & Bioengieering，2006，23(8)：18-20

[10] 袁利华，韩　建，徐国平. 可降解 PLA/黄麻新型复合材料的制备与力学性能[J]. 浙江理工大学学报，2007，24(1)：28-31.
Yuan Lihua，Han Jian，Xu Guoping. Processing technics and mechanical behaviors of biodegradable PLA/Jute fiber composites [J]. Journal of Zhejiang Sci-Tech University，2007，24(1)：28-31.

[11] ASTM. D3039/D3039M－00 Standard test method for tensile properties of polymer matrix composite material [S]. West Conshohocken，United States：ASTM International，2006：1-12.

[12] 中华人民共和国国家标准. GB 1447－83 玻璃纤维增强塑料拉伸性能试验方法[S]. 北京：国家标准局，1983：230-235.

[13] 中华人民共和国国家标准. GB/T 1040－92 塑料拉伸性能测试方法[S]. 北京：国家技术监督局，1992：24-31.

[14] 中华人民共和国国家标准. GB 3357－82 单向纤维增强塑料层间剪切强度试验方法[S]. 北京：国家技术监督局，1982：529-530.

[15] Garkhail S K，Heijenrath R W H，Peijs T. Mechanical properties of natural-fibre-mat-reinforced thermoplastics based on flax fibres and polypropylene [J]. Applied Composite Materials，2000(7)：351-372.

[16] Fukuda H，Chou T W. A probabilistic theory of the strength of short-fiber composites with variable fiber length and orientation [J]. Journal of Material Science，1982，17：1003-1011.

[17] Pipes R B，Mccullough R L，Taggart G. Behavior of discontinuous fiber composites：Fiber orientation [J]. Polymer Composite，1982，3(1)：34.

[18] Sanomura Yukio，Hayakawa K，Mizuno M. Effects of process conditions on Young's modulus and strength of extrudate in short-fiber-reinforced polypropylene [J]. Polym Compos，2007，1002 (10)：30-35.

[19] Goda Koichi，Yoshiyuki Kitamura，Junji Ohgi. Green composites reinforced with bamboo fibers [C] // 2nd International Workshop on "Green" Composites. Yamaguchi，Japan：Press of Yamaguchi University，2004：96-100.

[20] 纺织工业科学技术发展中心. GB 5887－86 中国纺织标准汇编——麻纺织卷[S]. 北京：中国标准出版社，2001：218-222.