

聚酰亚胺表面处理玻璃纤维/环氧树脂 复合材料力学性能

赵一兰¹, 胡程耀¹, 魏春¹, 霍冀川^{*2}

(1. 西南科技大学 材料科学与工程学院, 绵阳 621010; 2. 西南科技大学 分析测试中心, 绵阳 621010)

摘 要: 采用浇铸成型工艺制备含 0.5wt%、长度分别为 1 mm、3 mm、5 mm 的短切玻璃纤维/环氧树脂 (GF/EP) 复合材料, 研究含活性酚羟基和不含酚羟基的两种聚酰亚胺 (PI) 处理 GF 表面对纤维束拉伸强度及 GF/EP 复合材料力学性能的影响, 并进一步研究 PI 处理 GF 对复合材料热性能的影响。研究表明, 经过 PI 处理的 GF, 集束性和拉伸强度得到提高。含活性酚羟基聚酰亚胺 (PI1) 处理的 GF 拉伸强度由原丝束的 517 MPa 提高到 1 032 MPa, 不含酚羟基聚酰亚胺 (PI2) 处理的 GF 提高到 986 MPa。当 PI1 处理的 GF 长度为 3 mm 时, GF/EP 复合材料的力学性能最好, 拉伸强度比未处理的提高 23.62%, 拉伸模量提高 34.03%, 弯曲强度提高 28.74%, 断裂韧性提高 13.04%; PI2 处理的 GF, GF/EP 复合材料拉伸强度提高 15.87%, 拉伸模量提高 23.70%, 弯曲强度提高 14.11%, 断裂韧性提高 4.05%。此外, PI 处理 GF 对 GF/EP 复合材料热性能也有一定程度的提高。

关键词: 玻璃纤维; 表面处理; 环氧树脂; 聚酰亚胺; 力学性能

中图分类号: TB332 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-3851(2018)07-1850-07

Mechanical properties of polyimide surface treated glass fiber/epoxy resin composites

ZHAO Yilan¹, HU Chengyao¹, WEI Chun¹, HUO Jichuan^{*2}

(1. School of Material Science and Engineering, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China; 2. Analyses and Testing Center, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China)

Abstract: The short glass fiber/epoxy resin (GF/EP) composites with 0.5wt% GF were fabricated through casting method. The properties of GF/EP composites length 1 mm, 3 mm and 5 mm were studied, respectively. The mechanical properties and thermal properties of GF/EP composite and the tensile strength of the fiber tow with surface treatment of polyimide (PI) were investigated. Polyimides with reactive phenolic hydroxyl groups (PI1) and without (PI2) were prepared. The results show that tensile strength and strand integrity of the GF are improved. The tensile strength of GF treated with PI1 is increased from 517 MPa to 1 032 MPa and PI2 is increased to 986 MPa. GF/EP composites have the best mechanical properties when 3 mm GF treated with PI1, and tensile strength, tensile modulus, flexural strength and fracture toughness of PI1-GF/EP composites are increased by 23.62%, 34.03%, 28.74% and 13.04% respectively. The mechanical properties of GF/EP composites with treatment of PI2 are slightly improved. The tensile strength, tensile modulus, flexural strength and fracture toughness are increased by 15.87%, 23.70%, 14.11% and 4.05%, respectively. The glass transition temperature of PI2-GF/EP composite is significantly improved by treating GF with PI.

Keywords: glass fibers; surface treatment; epoxy resin; polyimide; mechanical properties

收稿日期: 2017-07-25; 录用日期: 2017-10-31; 网络出版时间: 2017-11-28 14:22

网络出版地址: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20171128.004>

基金项目: 四川省非金属复合材料与功能材料重点实验室开放基金(11zxfk02)

通讯作者: 霍冀川, 硕士, 教授, 硕士生导师, 研究方向为复合功能材料 E-mail: huojichuan@swust.edu.cn

引用格式: 赵一兰, 胡程耀, 魏春, 等. 聚酰亚胺表面处理玻璃纤维/环氧树脂复合材料力学性能[J]. 复合材料学报, 2018, 35(7): 1850-1856.

ZHAO Yilan, HU Chengyao, WEI Chun, et al. Mechanical properties of polyimide surface treated glass fiber/epoxy resin composites[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2018, 35(7): 1850-1856 (in Chinese).

玻璃纤维/环氧树脂(GF/EP)复合材料具有高比强度和比模量、耐腐蚀、性能可设计性强、成型收缩率小及易加工等优点,广泛应用于航天航空、体育用品、汽车、建筑、印刷电路等领域^[1-4]。纤维增强树脂基复合材料的力学性能主要取决于纤维和树脂自身的性能和结构、纤维与树脂间界面强度以及纤维承载载荷的能力^[5-7]。但是由于纤维存在表面缺陷,与树脂界面相容性不好,导致力学性能和热学性能差,这极大地限制了GF/EP复合材料的应用。因此,对GF进行表面处理,克服其表面缺陷,对增强GF/EP复合材料的力学性能极为重要。

目前,关于纤维的表面处理有很多报道,主要包括三种处理方法:高温、化学试剂氧化和偶联剂^[8-10]。高温和化学试剂氧化处理会破坏纤维自身性能,往往需要结合其他表面处理。Li等^[11]采用H₂O₂氧化并硅烷化GF后,表面接枝氨基封端的超支化聚酰胺,GF/EP复合材料的弯曲强度、拉伸强度和冲击强度均提高。Tzounis等^[12]采用浸涂法沉积工艺,制备了接枝多壁碳纳米管的GF(GF-CNT),发现在EP固化过程中,GF-CNT对环氧分子流动性很敏感,提出GF-CNT可以用作实时检测EP固化行为的无创复合传感器。此外,GF-CNT还显示出对紫外光的高灵敏度,为集成的复合紫外传感器提供可能。

聚酰亚胺(PI)是一类分子链中含有酰亚胺环的高分子聚合物^[13-15],以二酐和二胺单体在强极性非质子溶剂中合成其前驱体聚酰胺酸(PAA),经过化学或热亚胺化制得,具有优异的力学性能和耐高温性。研究者利用PI的优异性能,对纤维进行表面处理,并取得优异成果。原浩杰等^[16]合成不含高沸点有机溶剂的PAA溶液,再对T300级碳纤维(CF)实施上浆处理。处理后的CF表面形成均一稳定的PI涂层,起始分解温度和失重温度均有很大提高;高温氧化后,PI涂覆的CF丝束拉伸强度仅下降6%。高鑫等^[17]采用浓HNO₃氧化和PI包覆复合处理短切CF,制备了CF/热塑性聚酰亚胺(CF/TPI)复合材料。CF/TPI复合材料的力学性能大幅度提高,包覆后的CF耐热性能也有所提高。Naganuma等^[18]采用浸渍和高温气相沉积聚合(VDP)涂层方法,将均苯四羧酸二酐-4,4'-二氨基二苯醚(PMDA-ODA)和3,3',4,4'-二苯酮四羧酸二酐-丙二醛(BTDA-MDA)两种聚酰亚胺涂层分别沉积在CF上。涂层对CF表面的纳米缺陷有显著

的改善,使单丝拉伸强度增强。近年来采用PI改性纤维的研究主要集中于CF和CNT,用于GF表面处理的报道还比较少。

本文采用浇铸成型工艺制备了长度分别为1 mm、3 mm、5 mm的短切GF增强EP复合材料,研究了含活性酚羟基和不含酚羟基的两种PI处理GF表面对纤维束拉伸强度及GF/EP复合材料力学性能的影响。通过一系列测试表征,考察了GF包覆前后表面结构和形貌的变化,探讨了PI对GF/EP复合材料力学性能的增强机制。

1 实验材料及方法

1.1 原料

EC9-34 无碱玻璃纤维(GF),四川玻纤集团有限公司;E-51 环氧树脂(EP),中国石化;均苯四羧酸二酐(PMDA,96%),4,4'-二氨基二苯醚(ODA,98%),上海阿拉丁生化股份有限公司;2,2,2-(3-氨基-4-羟苯基)六氟丙烷(6FAP,98%),上海麦克林生化科技有限公司;浓HNO₃、N,N-二甲基乙酰胺(DMAc)、二乙烯三胺(DETA)、丙酮、无水乙醇,均为分析纯,成都科龙化工试剂厂。

1.2 聚酰胺酸(PAA)的合成

采用PMDA分别与ODA、6FAP合成了两种PAA,二酐与二胺的摩尔比为1.015:1。称取1.0012 g ODA,冰水浴条件下溶解于极性溶剂DMAc中,完全溶解后分批加入1.1072 g PMDA,搅拌24 h,得到黄色黏稠的ODA-PMDA PAA溶液。同上,称取1.8326 g 6FAP,冰水浴条件下溶解于溶剂DMAc中,完全溶解后分批加入1.1075 g PMDA,搅拌24 h,得到浅黄色粘稠的6FAP-PMDA PAA溶液,合成路线如图1所示。

1.3 PI-GF及复合材料的制备

先用浓HNO₃对GF-0氧化刻蚀1 h,记为GF,用DMAc将上述PAA溶液稀释为5wt%,通过拉丝装置制备PAA-GF,拉丝装置如图2所示。将PAA-GF置于烘箱200℃/2 h+240℃/0.5 h热亚胺化,得到6FAP-PMDA和ODA-PMDA PI处理的GF,分别记为PI1-GF和PI2-GF。采用浇铸成型工艺,根据GB/T 2567—2008^[19]制备一系列含0.5%短切GF的EP复合材料。加入15wt%无水乙醇稀释环氧、10wt% DETA(上述比例均为与EP的质量比),真空脱泡,倒入模具,按照25℃/

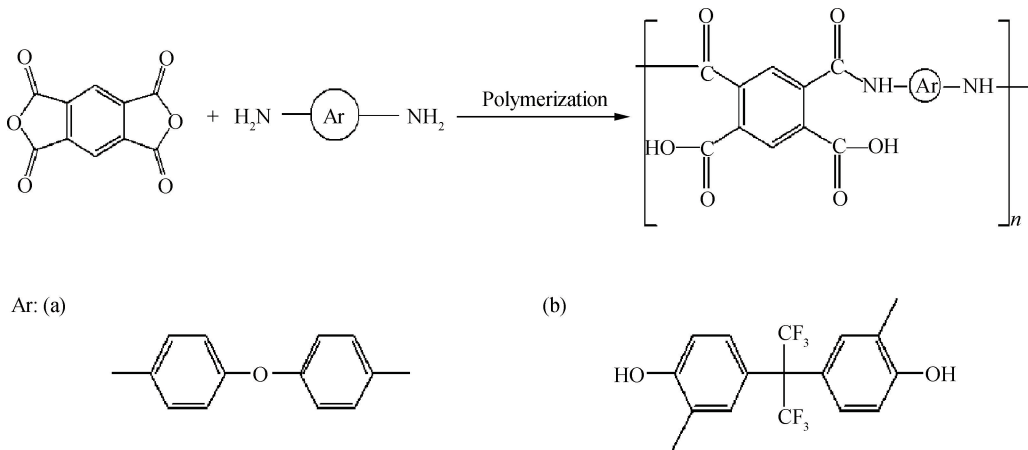


图1 聚酰胺酸(PAA)的合成路线

Fig. 1 Synthesis of polyamide acid (PAA) sizing

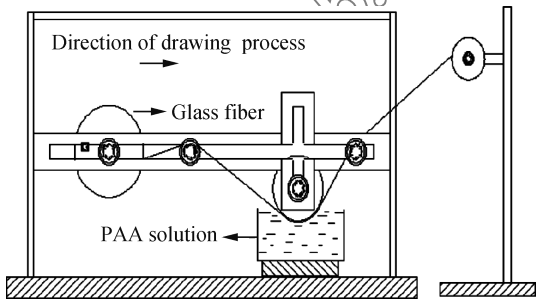


图2 玻璃纤维上浆装置图

Fig. 2 Scheme of the setup for glass fiber sizing

12 h+120℃/1.5 h 的程序固化。上述不同方法处理的 GF 如表 1 所示。

表 1 采用不同方法处理的玻璃纤维 (GF)

Table 1 Surface treated glass fiber (GF) by different methods

Sample	Method
GF-0	Bare glass fiber
GF	Nitric acid oxidized GF-0
PI1-GF	6FAP-PMDA PI coated GF
PI2-GF	ODA-PMDA PI coated GF

Notes: PI—Polyimide; 6FAP—2,2-bis(3-amino-4-hydroxyphenyl)hexafluoropropane; PMDA—Pyromellitic dianhydride; ODA—4,4'-oxybisbenzenamine.

1.4 性能测试与表征

采用 Nicolet 5700 傅里叶变换红外光谱 (FT-IR, PE 公司, 美国) 表征 PI-GF 微观形貌; H5KS 电子万能试验机 (Tinius-Olsen 公司, 美国) 测试纤维束拉伸性能, 测试 10 次取平均值, 测试标准为 GB/T 7690.3—2001^[20]; Q200 差示扫描量热仪 (DSC, TA 公司, 美国) 测试材料玻璃化转变温度 (T_g); MTS 微控电子万能试验机 (美特斯工业系统有限公司, 中国) 测试材料拉伸性能、弯曲性能和断裂韧

性, 测试 6 次取平均值, 弯曲性能测试标准为 GB/T 1449—2005^[21], 拉伸性能测试标准为 GB/T 1447—2005^[22], 断裂韧性测试标准为 ASTM D5045—99^[23]; Ultra-55 场发射扫描电子显微镜 (SEM, Carl Zeiss NTS GmbH, 德国) 观察材料断面形貌。

2 结果与讨论

2.1 PI-GF 的拉伸强度

纤维束拉伸性能如图 3 所示。可知, GF-0 的拉伸强度为 571 MPa, GF 拉伸强度为 468 MPa, PI1-GF 拉伸强度为 1 032 MPa, PI2-GF 拉伸强度为 986 MPa。PI 复合处理的 GF, 拉伸强度远高于原丝束, 这是由于 PI 具有优异的力学性能及对纤维良好的集束性^[24], 从而提高了纤维的拉伸强度。GF-0 和 GF 在拉伸过程中, 载荷只能通过未断裂的纤维承载, 直至完全断裂, 失去承载能力; PI 包覆的丝束, 拉伸过程中, 载荷还可以通过 PI 与断口附近纤维间的剪切力承载并传递下去^[25]。图 4 为

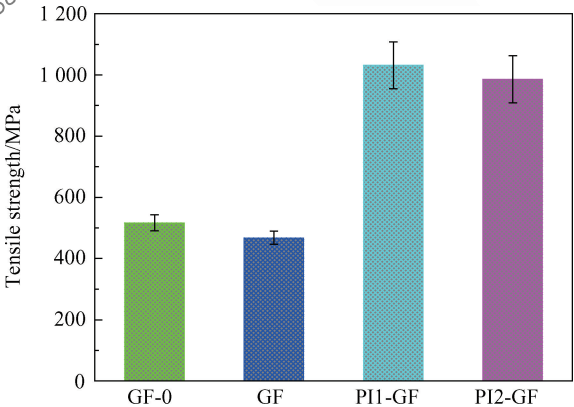


图3 GF 纤维束拉伸强度

Fig. 3 Tensile strength of GF tow

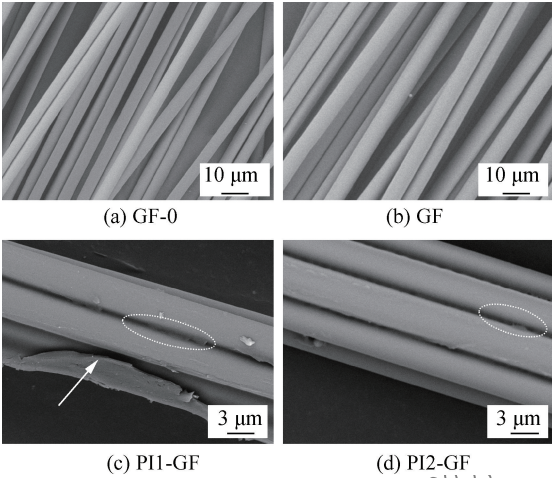


图 4 GF 丝束的 SEM 图像
Fig. 4 SEM images of GF tow

GF 丝束的 SEM 图像。可知, GF-0 和 GF 分散, 不成束(图 4(a)和图 4(b)), PI2-GF 纤维表面及纤维间附着有 PI, PI 成为连接单丝与单丝的桥梁(图 4(b)); PI1-GF 单丝间粘结强度更好(图 4(c)), 这是由于 PI1 含有活性酚羟基, 通过与 GF 表面的 Si—OH 形成化学键增强纤维间粘结强度。

图 5 为 PI-GF 的红外吸收光谱。由 PI1-GF 红外吸收光谱可见, $1\,782\text{ cm}^{-1}$ 和 $1\,729\text{ cm}^{-1}$ 处分别是 PI1 的酰亚胺环 C=O 反对称伸缩振动和对称伸缩振动吸收峰; 由 PI2-GF 红外吸收光谱可见, $1\,776\text{ cm}^{-1}$ 和 $1\,731\text{ cm}^{-1}$ 处分别是 PI2 的酰亚胺环 C=O 反对称伸缩振动和对称伸缩振动吸收峰。图谱中没有出现酸酐 $1\,820\text{ cm}^{-1}$ 和 $1\,760\text{ cm}^{-1}$ 处的特征吸收峰, 也没有出现酰胺 $1\,680\text{ cm}^{-1}$ 处的特征吸收峰, 表明 PI-GF 中没有残留反应物并且完全亚胺化。

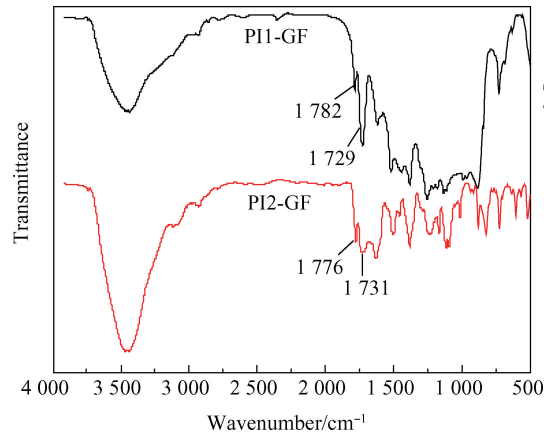


图 5 聚酰亚胺(PI)表面处理 GF 的红外光谱

Fig. 5 FTIR spectra of polyimide (PI) surface treated GF

2.2 两种 PI-GF 对 GF/EP 复合材料力学性能的影响

图 6 是不同长度的 GF 及两种 PI/GF 对 GF/EP 复合材料力学性能的影响。GF-0/EP 和 GF/EP 随着纤维长径比的增加均先增后减, 长度为 3 mm 时, 复合材料的整体力学性能最好。对于短切纤维增强 EP 复合材料, 长径比大的纤维, 容易团聚, 纤维不能均匀分散在树脂里, 导致复合材料受力不均, 降低了材料的力学性能^[26]。GF-0/EP 与 GF/EP 相比, 纤维长度相同时, GF/EP 的力学性能更好, 这是由于浓 HNO_3 氧化处理 GF-0, 在其表面产生 Si—OH, 提高了 EP 的浸润性, 使 GF/EP 表现出更好的力学性能。

当 GF 长度为 3 mm 时, PI1-GF/EP 复合材料的力学性能最好, 与 GF-0/EP 相比, PI1-GF/EP 的拉伸强度提高 23.62%, 拉伸模量提高 34.03%, 弯曲强度提高 28.74%, 断裂韧性提高 13.04%; PI2-GF/EP 的拉伸强度提高 15.87%, 拉伸模量提高 23.70%, 弯曲强度提高 14.11%, 断裂韧性提高 3.05%。由于含活性酚羟基的 PI1 与 GF 存在一定的化学结合, 复合材料高温固化过程中, PI1 的酚羟基可能参与环氧基开环, 基体和填料间的界面结合强度得以提高, 从而提高 PI1-GF/EP 复合材料的整体力学性能。

2.3 PI 表面处理 GF/EP 复合材料力学性能增强机制

图 7 为掺入 3 mm GF 的 GF/EP 复合材料的断裂微观形貌。由图 7(a)可见, 断裂时纤维被拔出, 暴露在树脂表面, 这是由于未处理的 GF-0 与 EP 粘结强度弱。浓 HNO_3 氧化处理 GF-0 制得 GF, 表面形成 Si—OH, 有利于树脂浸润, 与 EP 形成了界面层, 但界面结合不强, 纤维被部分拔出, 如图 7(b)箭头所示。由图 7(c)和图 7(d)可见, 纤维束嵌入树脂中, PI1 的活性酚羟基与 GF 的 Si—OH 有一定的化学结合, 使 GF 被 PI1 紧密包裹。复合材料高温固化过程中, PI1 的酚羟基可能参与环氧基开环, 在基体和填料之间形成的界面层可以有效地传递和松弛界面应力, 从而提高 PI1-GF/EP 复合材料的整体力学性能; PI2-GF 与 EP 之间存在空隙, 有纤维被拔出的凹槽, 表明材料断裂过程中, PI2 层对应力的传递较弱。

2.4 GF/EP 复合材料的热性能

图 8 为纤维长度为 3 mm 时 PI-GF/EP 的 DSC

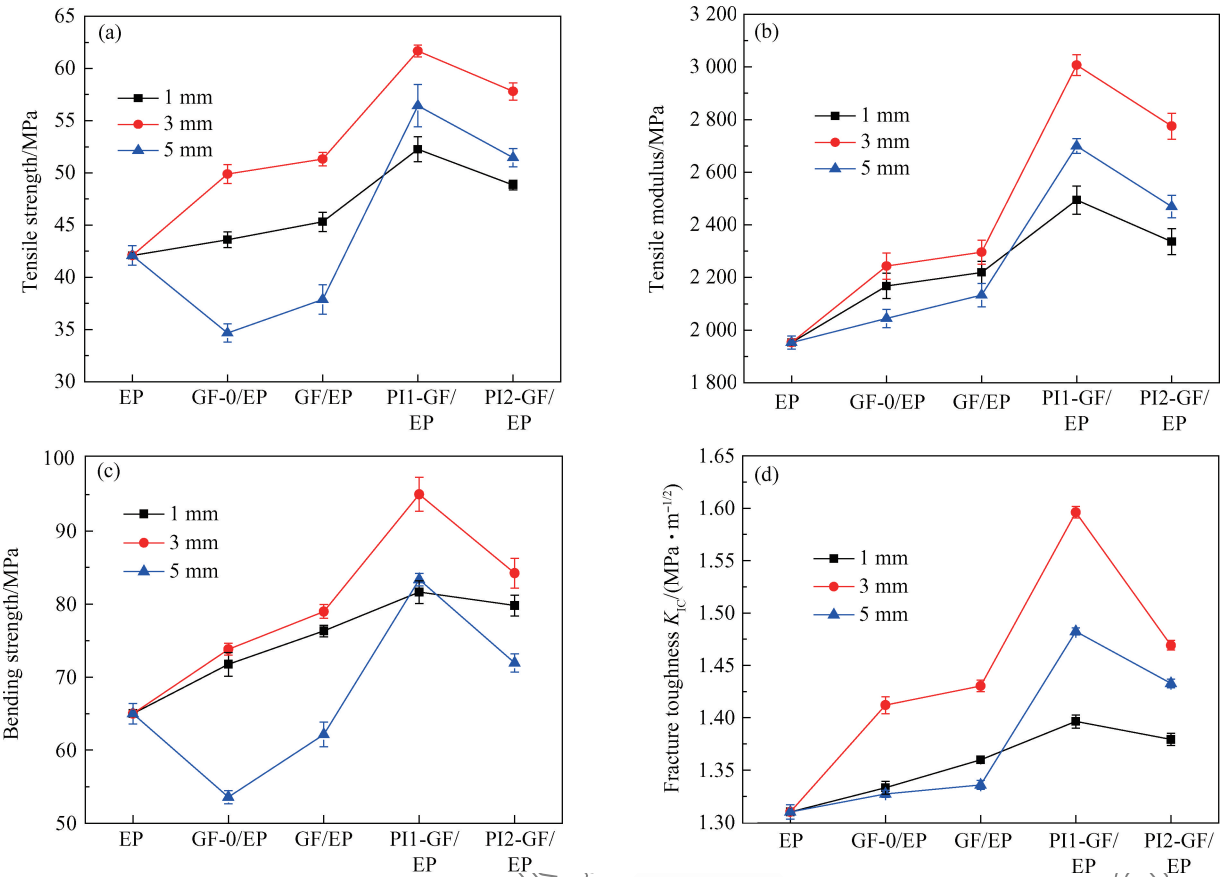


图 6 GF/EP、PI1-GF/EP 和 PI2-GF/EP 复合材料力学性能

Fig. 6 Mechanical properties of GF/EP, PI1-GF/EP and PI2-GF/EP composites

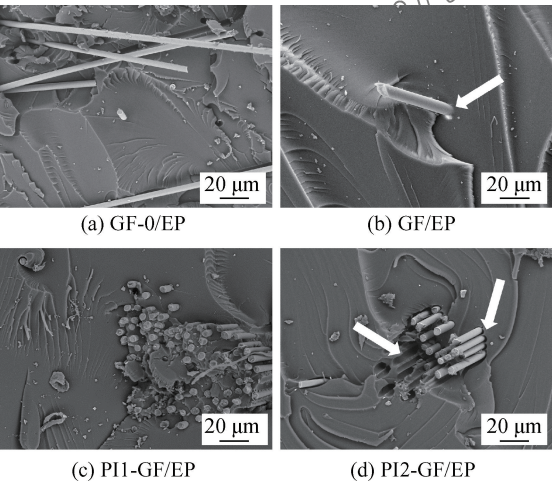


图 7 掺入 3 mm GF 的 GF/EP 复合材料的断面形貌

Fig. 7 Fracture surfaces of GF/EP composites with 3 mm GF

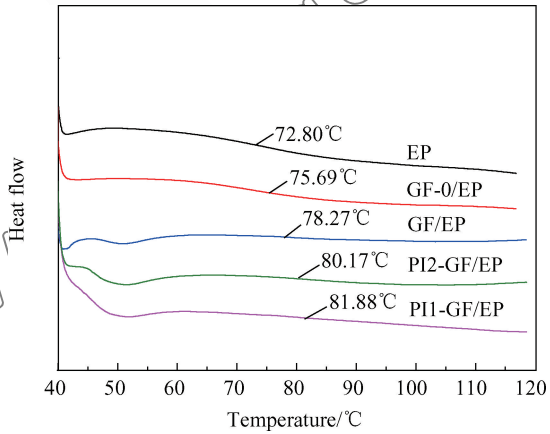


图 8 掺入 3 mm GF 的 GF/EP 复合材料的 DSC 曲线

Fig. 8 DSC curves of GF/EP composites with 3 mm GF

曲线。可知，EP、GF-0/EP、GF/EP、PI1-GF/EP 和 PI2-GF/EP 复合材料的玻璃化转变温度(T_g)依次为 72.80℃、75.69℃、78.27℃、81.88℃ 和 80.19℃。玻璃化转变温度与聚合物的交联密度有关^[27]，交联点增加，分子链的运动受到约束，在一

定范围内 T_g 随交联点增加而升高。在 EP 中掺入一定长度和含量的短切 GF，可以提高树脂的交联密度。与 GF-0/EP 相比，GF/EP 的 T_g 提高了 2.58℃，PI1-GF/EP 提高了 3.61℃，PI2-GF/EP 提高了 1.92℃。说明浓 HNO_3 氧化处理 GF-0 能提高纤维与树脂的界面结合强度，从而提高材料的耐热

性能,采用PI包覆GF能进一步改善GF/EP的耐热性能。

3 结 论

(1) 玻璃纤维(GF)经过聚酰亚胺(PI)表面处理后,集束性和拉伸强度提高了。2,2-二(3-氨基-4-羟苯基)六氟丙烷(6FAP)-均苯四羧酸二酐(PMDA)PI处理的GF,拉伸强度由原丝束的517 MPa提高到1 032 MPa;4,4'-二氨基二苯醚(ODA)-PMDA PI处理的GF,拉伸强度提高到986 MPa。

(2) 6FAP-PMDA PI(PI1)不仅能物理包覆于GF表面,其活性酚羟基还可以与GF表面Si—OH形成化学键,增强基体与填料的界面粘结强度;而ODA-PMDA PI(PI2)不含羟基,只能通过物理作用与GF结合。

(3) 当在环氧树脂(EP)中分别掺入PI1-GF和PI2-GF,且长度为3 mm时,PI1-GF/EP复合材料的力学性能最好。与GF-0/EP相比,PI1-GF/EP的拉伸强度提高23.62%,拉伸模量提高34.03%,弯曲强度提高28.74%,断裂韧性提高13.04%;PI2-GF/EP的拉伸强度提高15.87%,拉伸模量提高23.70%,弯曲强度提高14.11%,断裂韧性提高4.05%。

(4) 在EP中加入3 mm的PI-GF,GF/EP复合材料玻璃化转变温度 T_g 有所提高。

参考文献:

- [1] 陈祥宝,张宝艳,邢丽英.先进树脂基复合材料技术发展及应用现状[J].中国材料进展,2009,28(6):2-12.
CHEN X B, ZHANG B Y, XING L Y. Application and development of advanced polymer matrix composites[J]. Materials China, 2009, 28(6): 2-12 (in Chinese).
- [2] 孙士勇,杨睿,郭华锋,等.玻璃纤维/环氧树脂复合材料与镀层界面的Ni颗粒强化工艺[J].复合材料学报,2016,33(7):1408-1415.
SUN S Y, YANG R, GUO H F, et al. Process of glass fiber/epoxy composites coating interface adhesion with Ni particle reinforcement[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2016, 33(7): 1408-1415 (in Chinese).
- [3] SIKARWAR R S, VELMURUGAN R, GUPTA N K. Influence of fiber orientation and thickness on the response of glass/epoxy composites subjected to impact loading[J]. Composites Part B: Engineering, 2014, 60: 627-636.
- [4] PIHTILI H. An experimental investigation of wear of glass fibre-epoxy resin and glass fibre-polyester resin composite materials[J]. European Polymer Journal, 2009, 45(1): 149-154.
- [5] GAO X, GILLESPIE J W, JENSEN R E, et al. Effect of fiber surface texture on the mechanical properties of glass fiber reinforced epoxy composite[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2015, 74: 10-17.
- [6] FONSECA R B, ALMEIDA L N, MENDES G A M, et al. Effect of short glass fiber/filler particle proportion on flexural and diametral tensile strength of a novel fiber-reinforced composite[J]. Journal of Prosthetic Research, 2016, 60(1): 47-53.
- [7] AN Q, RIDER A N, THOSTENSON E T. Hierarchical composite structures prepared by electrophoretic deposition of carbon nanotubes onto glass fibers[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2013, 5(6): 2022-2032.
- [8] 王冬至. 玻璃纤维浸润剂分子设计及其对复合材料界面性能的影响[D]. 济南: 山东大学, 2014.
WANG D Z. The molecular design of sizing agents and its effect on glass fiber and composite interfacial property[D]. Ji'nan: Shandong University, 2014 (in Chinese).
- [9] 杨俊,蔡力锋,林志勇. 增强树脂用玻璃纤维的表面处理方法及其对界面的影响[J]. 塑料, 2004, 33(1): 5-8.
YANG J, CAI L F, LIN Z Y. Surface treatment of glass fiber for reinforced plastics and the effect on interface[J]. Plastics, 2004, 33(1): 5-8 (in Chinese).
- [10] 孟庆红,刘晓勇. 高弹性模量微晶玻璃纤维成分的研究[J]. 硅酸盐通报, 2014, 33(6): 1510-1513.
MENG Q H, LIU X Y. Research on high-elasticity modulus glass fiber components[J]. Bulletin of the Ceramic Society, 2014, 33(6): 1510-1513 (in Chinese).
- [11] LI S, LIN Q, HOU H, et al. Mechanical characterization of epoxy composites with glass fibers grafted by hyperbranched polymer with amino terminal groups[J]. Polymer Bulletin, 2016, 73(11): 2947-2960.
- [12] TZOUNIS L, LIEBSCHER M, TZOUNIS A, et al. CNT-grafted glass fibers as a smart tool for epoxy cure monitoring, UV-sensing and thermal energy harvesting in model composites[J]. RSC Advances, 2016, 6(60): 55514-55525.
- [13] BAZZAR M, GHAEMY M, ALIZADEH R. Synthesis and characterization of new fluorescent polyimides bearing 1, 2, 4-triazole and 1, 2-diaryl quinoxaline: Study properties and application to the extraction/elimination of metallic ions from aqueous media[J]. Reactive and Functional Polymers, 2013, 73(3): 492-498.
- [14] LI Z, LIU J, GAO Z, et al. Organo-soluble and transparent polyimides containing phenylphosphine oxide and trifluoromethyl moiety: Synthesis and characterization[J]. European Polymer Journal, 2009, 45(4): 1139-1148.
- [15] SHI Z, HASEGAWA M, SHINDO Y, et al. Thermo-processable polyimides with high thermo-oxidative stability as derived from oxydiphthalic anhydride and bisphenol a type

- dianhydride[J]. *High Performance Polymers*, 2000, 12(3): 377-393.
- [16] 原浩杰, 吕春祥, 张寿春, 等. 碳纤维表面聚酰亚胺涂层的制备及表征[J]. *新型碳材料*, 2015, 30(2): 115-121.
YUAN H J, LU C X, ZHANG S C, et al. Preparation and characterization of a polyimide coating on the surface of carbon fibers[J]. *New Carbon Materials*, 2015, 30(2): 115-121 (in Chinese).
- [17] 高鑫, 宋艳江, 王晓东, 等. 复合处理碳纤维增强聚酰亚胺复合材料力学性能[J]. *复合材料学报*, 2009, 26(3): 50-54.
GAO X, SONG Y J, WANG X D, et al. Mechanical properties of compound modification carbon fiber reinforced thermoplastic polyimide [J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2009, 26(3): 50-54 (in Chinese).
- [18] NAGANUMA T, NAITO K, YANG J M. High-temperature vapor deposition polymerization polyimide coating for elimination of surface nano-flaws in high-strength carbon fiber [J]. *Carbon*, 2011, 49(12): 3881-3890.
- [19] 中国国家标准化管理委员会. 树脂浇铸体性能试验方法: GB/T 2567—2008[S]. 北京: 中国标准出版社, 2009.
Standardization Administration of the People's Republic of China. Test methods for properties of resin casting body: GB/T 2567—2008[S]. Beijing: China Standards Press, 2009 (in Chinese).
- [20] 中国国家标准化管理委员会. 玻璃纤维断裂强力 and 断裂伸长的测定: GB/T 7690.3—2001 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2001.
Standardization Administration of the People's Republic of China. Determination of breaking force and breaking elongation for glass fiber: GB/T 7690.3—2001[S]. Beijing: China Standards Press, 2001 (in Chinese).
- [21] 中国国家标准化管理委员会. 纤维增强塑料弯曲性能试验方法: GB/T 1449—2005[S]. 北京: 中国标准出版社, 2005.
Standardization Administration of the People's Republic of China. Fiber-reinforced plastic composite: Determination of flexural properties: GB/T 1449—2005 [S]. Beijing: China Standards Press, 2005 (in Chinese).
- [22] 中国国家标准化管理委员会. 纤维增强塑料拉伸性能试验方法: GB/T 1447—2005[S]. 北京: 中国标准出版社, 2005.
Standardization Administration of the People's Republic of China. Fiber-reinforced plastic composite: Determination of tensile properties: GB/T 1447—2005 [S]. Beijing: China Standards Press, 2005 (in Chinese).
- [23] ASTM International. Standard test methods for plane-strain fracture toughness and strain energy release rate of plastic materials: ASTM D5045—99 [S]. West Conshohocken: ASTM International, 1999.
- [24] GHOSH A, BANERJEE S, KOMDER H, et al. Synthesis and characterization of fluorinated poly (imide siloxane) block copolymers[J]. *European Polymer Journal*, 2009, 45(5): 1561-1569.
- [25] 姚辉, 张旭, 陆晓峰. 玻璃纤维丝束拉伸性能试验研究[J]. *玻璃钢*, 2008(2): 11-18.
YAO H, ZHANG X, LU X F. Experimental study of tensile properties of glass fiber tow [J]. *Fiber Reinforced Plastics*, 2008(2): 11-18 (in Chinese).
- [26] 汤栋. 碳纳米纤维/黄麻/环氧树脂复合材料的制备与性能研究[D]. 大连: 大连工业大学, 2011.
TANG D. Research on the preparation and properties of VGNF/jute/EP composites[D]. Dalian: Dalian Polytechnic Universities, 2011 (in Chinese).
- [27] 王先胜, 肖扬国, 陈海生. 端氨基树枝状大分子 PAMAM/环氧树脂体系固化物的性能[J]. *复合材料学报*, 2007, 24(5): 38-43.
WANG X S, XIAO Y G, CHEN H S. Properties of cured compound of amine-terminated dendrimer PAMAM/epoxy resin system[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2007, 24(5): 38-43 (in Chinese).