

应力水平和纤维角度对 CGF/PP 复合材料蠕变行为的影响及其 Burgers 模型参数的数值预测

韩霞¹, 王继辉¹, 倪爱清^{*2}, 陈宏达¹, 孙子恒¹

(1. 武汉理工大学 材料科学与工程学院, 武汉 430070; 2. 武汉理工大学 材料复合新技术国家重点实验室, 武汉 430070)

摘要: 采用 DMA 的 Creep 模式分别测试了短时间内 (15 min) 聚丙烯 (PP) 在不同应力水平和温度下的单向拉伸蠕变行为, 长时间内 (10 h) 连续玻璃纤维增强聚丙烯 (CGF/PP) 复合材料单层板在不同应力水平和不同纤维角度上的拉伸蠕变行为。利用 Burgers 黏弹性模型拟合了蠕变测试数据, 构建了相关参数与应力水平和纤维角度的依赖性。结果表明: PP 和 CGF/PP 单层板的蠕变柔量均随应力增大而显著增加, 稳态蠕变速率也随之增加, 蠕变模量保留率明显下降, PP 基体的黏弹性主要决定了 CGF/PP 单层板在低应力水平下的蠕变行为; 30% 应力水平下, 偏轴拉伸的纤维角度在 0°~90° 范围内存在拉-剪耦合效应, 在 45° 时最为显著, 此时稳态蠕变速率和蠕变变形量最大; 利用四元 Burgers 黏弹性模型拟合各条件下蠕变曲线得到的数值模型与实验数据具有较好的相关性, 相关系数达到 0.99, 从得到的数值模型可知相关模型参数存在明显的应力和角度依赖关系; 利用模型参数的数值拟合公式分别预测 10 MPa 应力下 0° 纤维方向的蠕变曲线及 45° 纤维方向上 30% 应力水平的偏轴蠕变曲线均与实验曲线一致, 表明本文得到的数值模型的可靠性。

关键词: 热塑性复合材料; 连续玻璃纤维; 聚丙烯; 蠕变; 偏轴拉伸; Burgers 模型

中图分类号: TB332 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-3851(2019)05-1216-10

Effects of stress levels and fiber orientations on creep behavior of CGF/PP composite and numerical prediction of Burgers model parameters

HAN Xia¹, WANG Jihui¹, NI Aiqing^{*2}, CHEN Hongda¹, SUN Ziheng¹

(1. School of Materials Science and Engineering, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, China;

2. State Key Laboratory of Advanced Technology for Materials Synthesis and Processing, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, China)

Abstract: In this study, the short-term (15 min) tensile creep behaviors of polypropylene (PP) at different temperature and stress levels were examined by DMA creep model test, followed by the characterization on the long-term tensile creep behavior (10 h) continuous glass fiber reinforced polypropylene composites (CGF/PP) at the different stress levels and fiber orientations. The Burgers viscoelastic model was adopted to simulate the materials creep curves and pertinent model parameters associated with the stress levels and fiber orientations were derived. The results show that, with the rise of loaded stress, the creep compliance and steady-state creep rate of PP and uni-directional CGF/PP laminate both increase significantly, and the creep modulus retention rate decrease obviously, demonstrating that the creep behaviors of CGF/PP under low stress levels is dependent on the viscoelastic properties of PP matrix. The tensile-shear coupling effects occur in the loaded angle from 0° to 90° for the off-axis tension with a stress level of 30%, specifically in the 45° where steady-state creep rate and the creep deformation of composites exhibit maximum values. The derived numerical model by means of four element Burgers viscoelastic model to fit the

收稿日期: 2018-04-26; 录用日期: 2018-07-06; 网络出版时间: 2018-07-26 18:24

网络出版地址: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20180725.003>

基金项目: 中央高校基本科研业务费(185201001)

通讯作者: 倪爱清, 博士, 副研究员, 硕士生导师, 研究方向为树脂基复合材料性能及模拟仿真 E-mail: ani@whut.edu.cn

引用格式: 韩霞, 王继辉, 倪爱清, 等. 应力水平和纤维角度对 CGF/PP 复合材料蠕变行为的影响及其 Burgers 模型参数的数值预测[J]. 复合材料学报, 2019, 36(5): 1216-1225.

HAN Xia, WANG Jihui, NI Aiqing, et al. Effects of stress levels and fiber orientations on creep behavior of CGF/PP composite and numerical prediction of Burgers model parameters[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2019, 36(5): 1216-1225 (in Chinese).

creep curves in different conditions matches well with the experimental data, with a correlation coefficients of 0.99 between them. The numerical clearly illustrated the stress and fiber orientation dependence for the pertinent model parameters. The numerical formula of model parameters was established. The estimated tensile creep curve in the 0° fiber direction at 10 MPa and the estimated off-axis tensile creep curve in the 45° off-axis fiber direction at 30% of stress level are nearly identical with the experimental curve, showing the reliability of the derived numerical model in this paper.

Keywords: thermoplastic composites; continuous glass fibers; polypropylene; creep; off-axis tensile; burgers modelling

连续纤维增强热塑性复合材料具有高韧性、高损伤容限、易成型加工、可回收再利用等优点,其应用潜力引起研究者广泛的关注。其中连续玻璃纤维增强聚丙烯(Continuous Glass Fiber Reinforced Polypropylene, CGF/PP)复合材料具有密度低、强度高、耐腐蚀、抗冲击性能好且成本低等优势,于近几年得到了快速的发展^[1-2]。例如:瑞士固瑞特公司 PLYTRON™ PP 片材已广泛运用于汽车零部件,如汽车底板、发动机罩、保险杠等;美国克瑞公司 Zenicon™ CGF/PP 复合材料也已经广泛用于卡车、火车、船运集装箱用高强抗冲板材及蜂窝夹心复合材料蒙皮结构中。尽管 CGF/PP 复合材料发展迅速,但其耐疲劳性能、黏弹性行为仍缺少系统的理论研究。聚丙烯(PP)树脂基体属于结晶态高聚物,在长期使用和储存过程中受温度影响和外力的作用下,分子聚集态会发生改变,产生蠕变及应力松弛现象,最终导致其结构失效^[3]。纤维增强树脂基复合材料的蠕变极限强度低,通常只有强度值的 40% 左右,当环境温度升高或受外力载荷时,材料内耗引起自身温度升高,其黏弹性变形明显^[4-5]。以上特点严重影响了其结构件的使用安全和稳定性,大大限制了 CGF/PP 复合材料的工程应用^[6]。

近几年来,针对复合材料蠕变行为的研究众多,主要集中于短纤维增强热塑性复合材料或单向纤维增强热固性复合材料两个方向。其中,Fliegenger 等^[7]和 Chevali 等^[8]结合实验和有限元模拟的方法,研究了纤维含量、纤维长度及纤维排列对纤维增强热塑性复合材料常温蠕变行为的影响。研究发现,材料的蠕变柔量随纤维含量的增加而减小,且纵向排列的纤维明显增大了材料的蠕变柔量,在低应力状态下建立的 Burgers 模型能够很好地拟合材料的蠕变行为;Kawai^[9]研究了单向纤维增强环氧树脂复合材料在 $0^\circ\sim45^\circ$ 范围的偏轴拉伸蠕变断裂行为和蠕变断裂机制。研究发现,纤维角度对蠕变强度有较大影响,并通过实验建立了偏轴拉伸角度与蠕变强度的数学模型;Goertzen 等^[10]

通过设计拉伸、弯曲蠕变试验验证了时温等效原理、热活化能理论及黏弹性 Findley 模型、Scharperry 模型的有效性,并建立四元件 Burgers 组合模型,预测了碳纤维增强环氧树脂基复合材料在 77% 应力水平下的常温蠕变行为,有效年限为 50 年;刘鹏飞等^[11]综述了树脂基复合材料蠕变性能的研究进展,讨论了纤维、基体的蠕变性能及温度、外部应力和材料性质对复合材料蠕变性能的影响规律,列举了目前常用的几种蠕变模型并分析了其适用性;钟铁峰等^[9]则通过层合板细观力学理论计算了聚合物基复合材料的有效蠕变柔度系数,从理论上预测了复合材料宏观应力-应变行为。

本文针对 PP 基体及 CGF/PP 单层板,利用 DMA 的 Creep 模式测试了 PP 在不同温度和不同应力水平下的短期蠕变行为,及 CGF/PP 单层板在不同应力水平下 10 h 蠕变行为及其在不同纤维方向上的拉伸蠕变行为。通过实验结果对比,研究了应力水平和纤维角度对 CGF/PP 单层板蠕变行为的影响规律。引用四元件 Burgers 蠕变模型对实验结果进行拟合,并对其拟合参数弹性模量 E_1 、主蠕变模量 E_2 、主蠕变阻尼 η_1 、次蠕变阻尼 η_2 进行数值预测,建立应力水平和纤维角度依赖的 CGF/PP 单层板蠕变柔度系数预测模型。

1 实验材料及方法

1.1 原材料

聚丙烯(PP),牌号为 KP503,熔融指数为 60.0 g/10 min(测试温度为 230°C ,标准试验负荷为 2.160 kg),中国石油化工集团有限公司。CGF/PP 单层板,厚度为 0.25 mm,连续玻璃纤维(CGF)质量分数为 65wt%,实验室自制。

PP 试样制备:用标准模具在平板硫化机上压制 0.5 mm 厚的 PP 板,模具温度为 180°C ,模具压力为 10 MPa,冷却时间为 5 min。

CGF/PP 层合板制备:使用热压机压制,铺层方式分别为 $[0]_4$ 、 $[0]_8$,热压条件: 180°C , 3 MPa, 10 min,保压冷却速度为 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 。制备层合板厚

度分别为 0.97 mm、1.91 mm。

1.2 拉伸力学性能测试

CGF/PP 层合板拉伸性能按照 GB/T 1040.5—2008^[13] 标准在 Instron1341 型万能材料试验机和配套高低温环境试验箱内进行测试。0°拉伸实验条件：温度分别为 25℃ 和 65℃，试样尺寸为 250 mm×15 mm×1 mm，两端采用铝片加强。与纤维方向分别呈 15°、30°、45°、60°、75°、90°的偏轴拉伸实验条件：温度为 65℃（与短期蠕变条件相同），试样尺寸为 250 mm×25 mm×2 mm，两端采用铝片加强。

PP 拉伸模量通过 DMA（型号为 Q800，美国 TA 仪器）的 Stress/Strain 实验方案测试，实验条件：温度为 65℃（与短期蠕变条件相同），拉伸速率为 0.4 N/min，试样尺寸为 25 mm×4 mm×0.5 mm。

1.3 PP 短期拉伸蠕变性能测试

PP 的 15 min 短期拉伸蠕变性能通过 DMA Q800 Creep 实验方案测试，设定静载力，在恒温条件下测量材料的形变量随时间的变化。PP 玻璃化转变温度为 -13.15℃，软化点为 106.85℃^[14]，实验设置温度区间为 25~65℃，高于 PP 的玻璃化转变温度，低于软化点温度，适应于 PP 构件的普遍工作环境。A 组实验条件：静态载荷为 8 N，设置温度梯度为 25℃、35℃、45℃、55℃和 65℃；B 组实验条件：温度为 65℃（加速蠕变表征），静态载荷分别为 2 N、4 N、8 N、12 N。试样尺寸为 25 mm×4 mm×0.5 mm。

1.4 CGF/PP 拉伸蠕变性能测试

CGF/PP 单层板沿纤维方向 10 h 的拉伸蠕变性能通过 DMA Q800 Creep 实验方案测试。设置常温环境下 10 h 较长期蠕变，以研究 CGF/PP 单层板稳态蠕变阶段规律，并与 PP 的 15 min 高温短期蠕变规律对比。实验条件：温度为 25℃，静态载荷分别为 4 N、8 N、10 N、12 N、14 N。试样尺寸为 25 mm×4 mm×0.25 mm。

CGF/PP 单层板在沿纤维方向分别呈 15°、30°、45°、60°、75°、90°偏轴拉伸强度的 30% 应力水平下，15 min 短期蠕变性能通过 DMA Q800 Creep 实验方案测试，实验条件如表 1 所示。试样尺寸为 25 mm×4 mm×0.25 mm。

2 Burgers 黏弹性蠕变模型

四元件 Burgers 黏弹性模型由产生弹性形变的弹簧、产生黏流形变的黏壶及产生高弹形变的弹

表 1 连续玻璃纤维增强聚丙烯 (CGF/PP) 复合材料偏轴拉伸蠕变实验条件

Table 1 Off-axis tensile creep experiment condition of continuous glass fiber reinforced polypropylene (CGF/PP) composites

Off-axis angle/(°)	Temperature/℃	Stress/MPa
15	65	9.0
30	65	4.8
45	65	2.7
60	65	1.8
75	65	1.2
90	65	0.9

簧-黏壶并联结构三部分串联构成^[15]，模型参数分别为弹性模量 E_1 、主蠕变模量 E_2 、主蠕变阻尼 η_1 、次蠕变阻尼 η_2 ，如图 1 所示。在单向力作用下，Burgers 黏弹性模型能够较好的模拟纤维增强热塑性复合材料的蠕变变形过程^[7]。

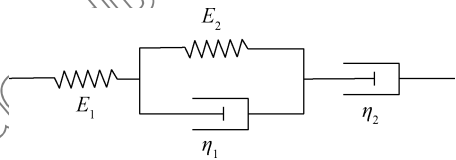


图 1 四元件 Burgers 模型

Fig. 1 Four elements Burgers model modelling

四元件 Burgers 模型的一维本构方程为

$$\frac{E_2}{\eta_2}\sigma + \left(1 + \frac{E_2}{E_1} + \frac{\eta_1}{\eta_2}\right)\dot{\sigma} + \frac{\eta_1}{E_2}\ddot{\sigma} = E_2\dot{\epsilon} + \eta_1\ddot{\epsilon} \quad (1)$$

经 Laplace 逆变换得到

$$\epsilon(t) = \epsilon_1 + \epsilon_2 + \epsilon_3 = \sigma_0 \left[\frac{1}{E_1} + \frac{1}{E_2}(1 - e^{-t/\tau}) + \frac{t}{\eta_2} \right] = \sigma_0 C(t) \quad (2)$$

式中 $\tau = \eta_1/E_2$ 为松弛时间； $C(t)$ 为蠕变柔量； ϵ_1 为普弹形变部分； ϵ_2 为高弹形变部分； ϵ_3 为黏性流动形变部分。在时间近似于 0 时，材料的弹性模量即为 E_1 。得蠕变柔量与时间的关系式为

$$C(t) = \frac{1}{E_1} + \frac{1}{E_2}(1 - e^{-t/\tau}) + \frac{t}{\eta_2} \quad (3)$$

蠕变模量为初始应力与拉伸蠕变应变之比，蠕变模量的保留率 c 为任意 t 时刻的蠕变模量与初始蠕变模量的比值，可表征材料的力学性能随时间的变化规律。可由蠕变柔量计算得

$$c(t) = \frac{E(t)}{E(0)} = \frac{C(0)}{C(t)} \quad (4)$$

对 PP 基体和 CGF/PP 单层板而言 Burgers 黏弹性模型参数可由 PP 基体和 CGF/PP 单层板的短期拉伸蠕变实验数据拟合得到。在不同的应力水平

和纤维角度下将得到一系列的模型参数 E_1 、 E_2 、 η_1 、 η_2 ，这些模型参数具有明显的应力依赖性，表现出非线性黏弹性能。本文将依据实验数据，确定经验函数对 Burgers 黏弹性模型参数进行数值拟合，以预测不同条件下 CGF/PP 单层板的蠕变模型。

3 结果与讨论

3.1 PP 蠕变性能

图 2 为 PP 在 4 MPa 拉应力作用下，分别于 25℃、35℃、45℃、55℃ 和 65℃ 环境中的蠕变曲线。结果表明，随着温度的升高，PP 的抗蠕变性能明显下降，表现出非线性蠕变行为；且随着温度的升高，PP 的蠕变模量的保留率减小，依次为 54.76%、45.02%、43.37%、39.17%、35.84%。PP 蠕变模量保留率下降的主要原因是由于 PP 属于结晶高聚物，晶区和非晶区的链段共同作用而发生蠕变，当温度高于 PP 的玻璃化转变温度时，随着温度升高，链段运动变得容易，且自由体积增大，分子链运动能力显著提高，加速了蠕变的发生^[16]。

图 3 为 PP 于 65℃ 环境温度中，分别在 1 MPa、2 MPa、4 MPa 和 6 MPa 拉应力作用下的蠕变曲线。结果表明，在相同的温度下，外加载荷对 PP 蠕变行为具有明显的加速作用，且应力水平越高，蠕变模量的保留率越小，分别为 79.75%、73.02%、35.84%、28.80%。这是由于随着外加载荷的增大，使 PP 分子链的活动能力增强，导致其蠕变模量保留率下降。

运用 Origin 软件对 PP 蠕变实验数据进行拟合，根据蠕变柔量与时间的关系式(3)，自定义非线性拟合公式：

$$y = \frac{1}{E_1} + \frac{1}{E_2} (1 - e^{\frac{-t}{\eta_1/E_2}}) + \frac{x}{\eta_2} \tag{5}$$

模型参数 E_1 、 E_2 、 η_1 、 η_2 拟合结果如表 2 所示。对

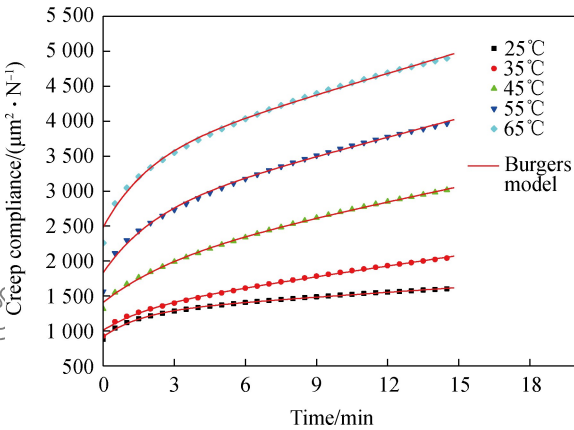


图 2 聚丙烯(PP)在 4 MPa 拉应力下不同温度时的蠕变曲线
Fig. 2 Creep curves of polypropylene (PP) at different temperatures under 4 MPa

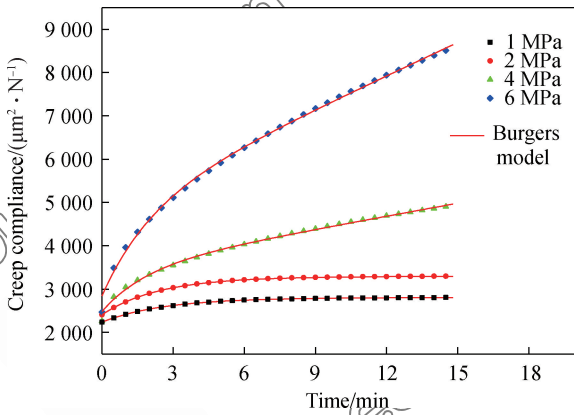


图 3 PP 在 65℃ 下不同加载应力的蠕变曲线
Fig. 3 Creep curves of PP under different stress at 65℃

比实验与拟合结果，发现二者拟合相关系数达到 0.996，具有非常高的准确性，能够有效的反映 PP 蠕变柔量随时间变化的规律。 E_1 为 PP 的初始弹性模量，可以看出， E_1 受温度影响显著，受应力水平的影响较小，与实验测得 PP 在 65℃ 环境中的弹性模量 427 MPa 较接近。此外，同一温度下，模型

表 2 PP 在不同条件下 Burgers 模型参数

Experiment conditions		E_1 /MPa	E_2 /MPa	$\eta_1/(10^4 \text{ MPa} \cdot \text{s})$	$\eta_2/(10^5 \text{ MPa} \cdot \text{s})$	R^2
Temperature/℃	Stress/MPa					
25	4	1 087.18	2 781.20	27.30	26.20	0.9981
35	4	987.74	3 170.75	37.70	11.90	0.9974
45	4	709.20	1 686.21	31.00	8.45	0.9992
55	4	545.25	1 155.43	14.70	6.71	0.9969
65	1	447.01	1 805.57	27.90	9.20	0.9996
65	2	415.14	1 150.09	16.70	6.80	0.9987
65	4	402.70	905.30	11.40	5.97	0.9976
65	6	371.55	498.48	6.16	2.34	0.9988

Notes: E_1 —Elastic modulus; E_2 —Primary creep modulus; η_1 —Primary creep damp; η_2 —Secondary creep damp; R^2 —Coefficient of determination.

参数 E_2 、 η_1 、 η_2 具有明显的应力依赖性，随加载应力增大而减小。

3.2 CGF/PP 单层板拉伸蠕变性能和蠕变模型参数的应力依赖关系

图 4 为 CGF/PP 复合材料单层板沿纤维方向的 10 h 常温拉伸蠕变实验结果。可以发现，蠕变行为呈现两个阶段：第一阶段为加速蠕变阶段，此时蠕变柔量随时间快速增加；第二阶段为稳态蠕变阶段，此时蠕变速率趋于稳定，应变随时间持续增加，直至材料发生蠕变破坏。此外，应力水平越高，材料的加速蠕变阶段持续时间越长，蠕变行为更加显著。图 5 为 CGF/PP 复合材料单层板在不同应力水平下蠕变 10 h 后稳态蠕变速率、蠕变变形量和蠕变模量保留率的变化趋势。可以发现，蠕变模量保留率随加载应力的增大显著降低，蠕变变形量和稳态蠕变速率随加载应力的增大而显著增加。其原因是由于 PP 基体在 CGF/PP 复合材料单层板中起着黏接纤维和传递应力的作用，由于 PP 基体聚合物具有黏弹性，使 CGF/PP 复合材料单层板也具有黏弹性，其蠕变行为受应力水平因素的影响显著。对比 PP 短期蠕变行为的研究发现，CGF/PP 复合材料单层板的蠕变行为并非是黏弹性树脂与线弹性纤维的简单叠加，基体与纤维通过界面剪应力达到新的平衡。在低应力水平下，界面结合完好，复合材料的蠕变性能主要由 PP 基体材料的黏弹性流动决定^[17]。

分析 CGF/PP 复合材料单层板在 4 MPa、8 MPa、12 MPa、14 MPa 加载应力下 10 h 蠕变实验数据，并运用 Origin 软件对其进行拟合，通过自定义非线性拟合式(5)，模型参数 E_1 、 E_2 、 η_1 、 η_2 拟

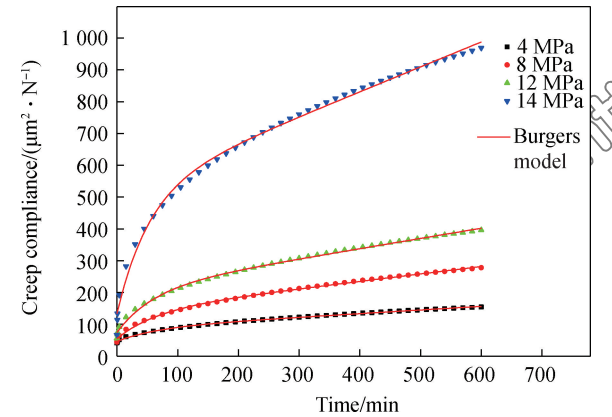


图 4 CGF/PP 复合材料单层板在纤维方向上 10 h 常温拉伸蠕变曲线

Fig. 4 Creep curves of CGF/PP composites single layer at normal temperature over 10 h in direction of fiber

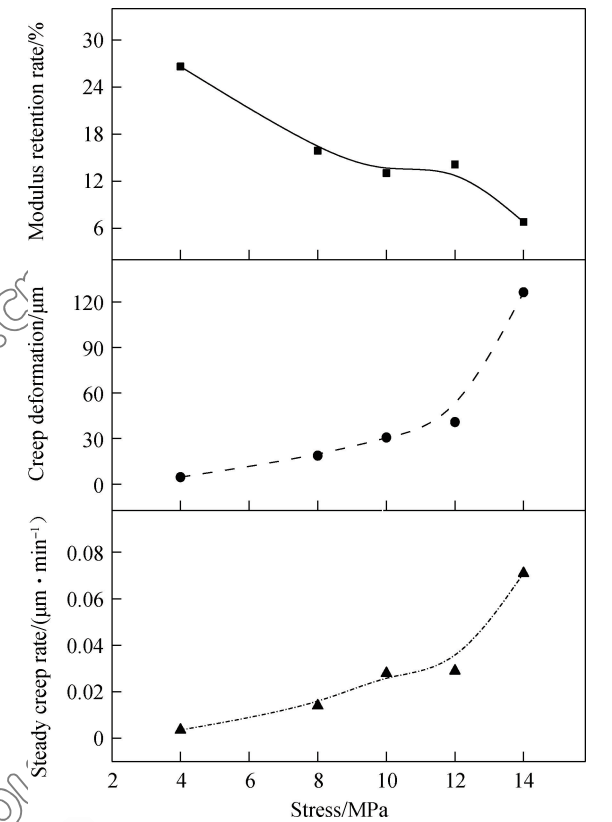


图 5 CGF/PP 复合材料单层板在不同应力条件下蠕变 10 h 后的蠕变模量保留率、蠕变变形量、稳态蠕变速率的变化曲线

Fig. 5 Results about creep modulus retention rate, creep deformation and steady creep rate of CGF/PP composite single layer at normal temperature over 10 h

合结果如表 3 所示。对比试验与拟合结果发现，曲线拟合相关系数达到 0.992，能够准确的反映 CGF/PP 复合材料单层板在不同应力水平下蠕变柔量随时间的变化规律，且应力水平越小，拟合程度越高。

从图 4 可以看出，Burgers 模型对初始蠕变柔量拟合偏差较大。当实验起始蠕变柔量为 $52.00 \mu\text{m}^2/\text{N}$ ，即初始模量 $E_1 = 19\,230 \text{ MPa}$ 时，模型参数 E_1 的拟合结果随施加应力增大而有所减小，如表 3 所示。出现此现象的原因是由于施加的应力值越大，初始阶段蠕变柔量变化越快，采集的数据差距较大，初始点在计算机拟合过程中被忽略。此外，从表 3 可以看出，模型参数 E_2 、 η_1 、 η_2 具有明显的应力依赖性，且随加载应力增大而减小，与 PP 基体的模型参数变化趋势一致。运用数学公式对 4 MPa、8 MPa、12 MPa、14 MPa 加载应力下的模型参数进行数值拟合，拟合结果如图 6、图 7 和图 8 所示，得到 Burgers 黏弹性模型参数的应力依赖性符合如下公式(应力水平在 2~15 MPa)：

$E_1 = 19230 \text{ MPa}$ (6)

$E_2 = 48956.93 \times 0.8373^\sigma$ (7)

$\eta_1 = 1.5428 \times 10^8 - 5.5808 \times 10^7 \times \ln(\sigma - 1.2091)$ (8)

$\eta_2 = 7.2736 \times 10^8 - 2.4899 \times 10^8 \times \ln(\sigma - 1.7538)$ (9)

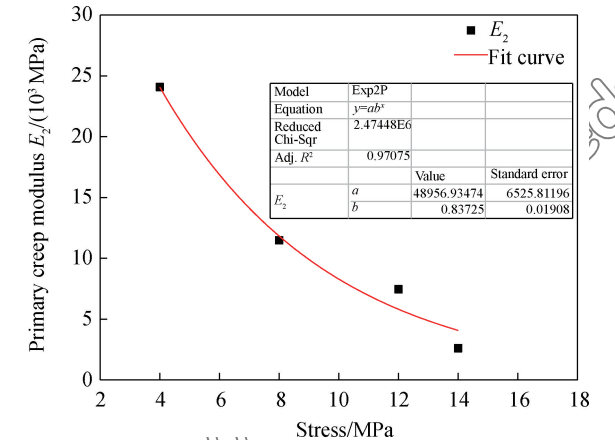


图 6 CGF/PP 复合材料蠕变模型参数 E_2 与应力值的拟合曲线
Fig. 6 Fit curve of CGF/PP composite creep model parameter E_2 with stress value

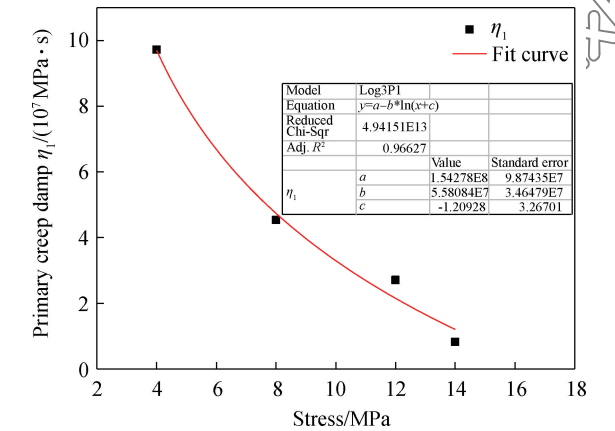


图 7 CGF/PP 复合材料蠕变模型参数 η_1 与应力值的拟合曲线
Fig. 7 Fit curve of CGF/PP composite creep model parameter η_1 with stress value

为了验证模型的正确性, 由以上公式计算得到 10 MPa 加载应力水平下 CGF/PP 复合材料单层板

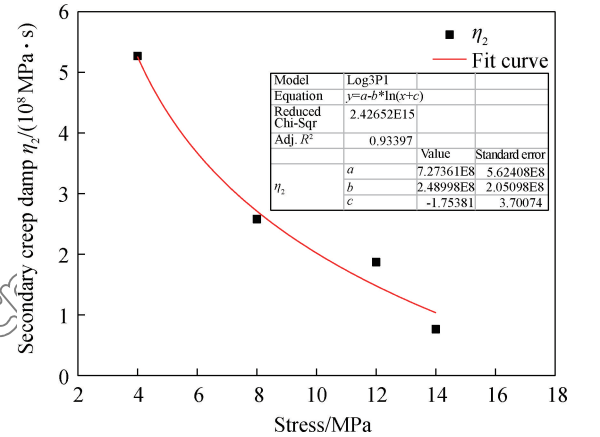


图 8 CGF/PP 复合材料蠕变模型参数 η_2 与应力值的拟合曲线
Fig. 8 Fit curve of the CGF/PP composite creep model parameter η_2 with stress value

的蠕变曲线, 将相同条件下 10 h 的实验数据与计算得到的蠕变柔量对比, 如图 9 所示。可以看出, 该 Burgers 模型参数的应力依赖性数值预测方法能够较好的预测 CGF/PP 复合材料单层板在一定应力范围内的蠕变行为。

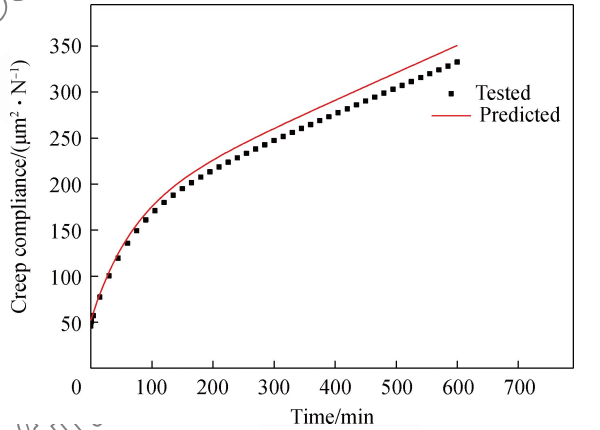


图 9 CGF/PP 复合材料单层板在 10 MPa 应力下 10 h 蠕变曲线
Fig. 9 Creep curve of CGF/PP composite single layer over 10 h at 10 MPa.

3.3 CGF/PP 单层板偏轴拉伸蠕变性能和蠕变模型参数的纤维角度依赖关系

图 10 为 CGF/PP 复合材料单层板于 65℃ 环境

表 3 CGF/PP 复合材料单层板在纤维方向上不同条件下 Burgers 模型参数						
Table 3 Creep Burgers modelling parameters of CGF/PP composite single layer under different experiment conditions						
Experiment conditions		E_1 /MPa	E_2 /MPa	$\eta_1/(10^8 \text{ MPa}\cdot\text{s})$	$\eta_2/(10^7 \text{ MPa}\cdot\text{s})$	R^2
Temperature/℃	Stress/MPa					
25	4	21 462.41	24 079.85	97.20	52.70	0.9974
25	8	18 203.17	11 474.43	45.40	25.80	0.9973
25	12	13 338.94	7 445.76	27.10	18.70	0.9946
25	14	7 461.61	2 606.13	8.24	7.66	0.9921

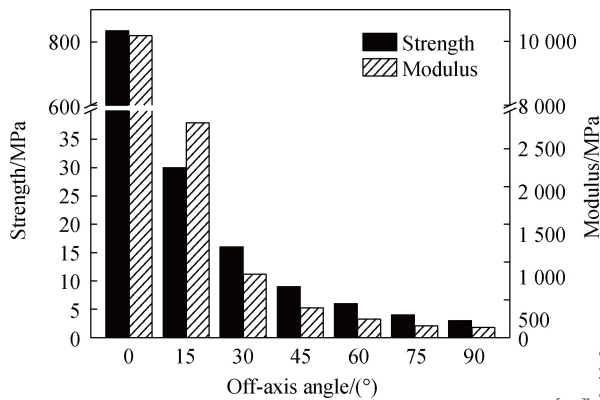


图 10 CGF/PP 复合材料单层板在 65℃ 下偏轴拉伸强度和模量
Fig. 10 Off-axis tensile strength and modulus of CGF/PP composite single layer at 65℃

中在不同纤维角度上的偏轴拉伸强度和模量测试结果。取单层板各纤维角度上强度的 30% 为蠕变实验恒定应力水平, 实验结果如图 11 所示。分析试验结果发现, 随着纤维角度的增加, 30% 应力水平下的 CGF/PP 复合材料单层板抗蠕变性能呈下降趋势, 蠕变的加速段增长, 初始蠕变柔量因初始模量的显著减小而增大。造成此现象的原因是由于 PP 基体会在长期载荷作用下发生蠕变, 而纤维的蠕变几乎可以忽略不计, 当偏轴拉伸的纤维角度越大时, 树脂基体承载比重越大, 蠕变现象越明显, 故而蠕变柔量随时间变化越快。

图 12 为 CGF/PP 复合材料单层板在 30% 应力水平下偏轴拉伸蠕变 15 min 后稳态蠕变速率、蠕变变形量和蠕变模量保留率的变化曲线。分析发现, 材料的稳定蠕变速率和蠕变变形量在 45° 偏轴角度时最大, 蠕变模量保留率在 45° 偏轴角度时存在拐角。这是由于在恒定拉应力作用下, 纤维角度在 0°~90°

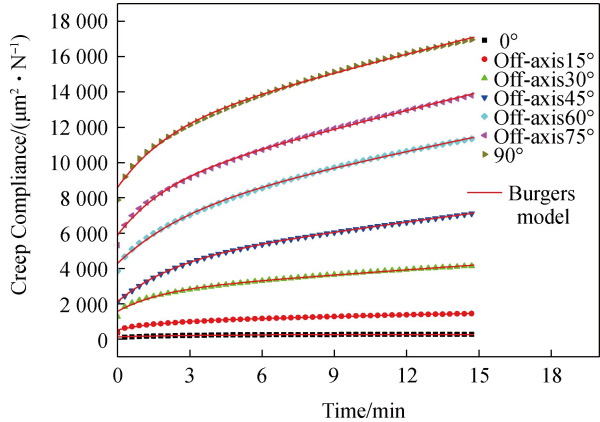


图 11 CGF/PP 复合材料单层板在 65℃ 下偏轴拉伸蠕变曲线
Fig. 11 Off-axis creep curve of CGF/PP composite single layer at 65℃

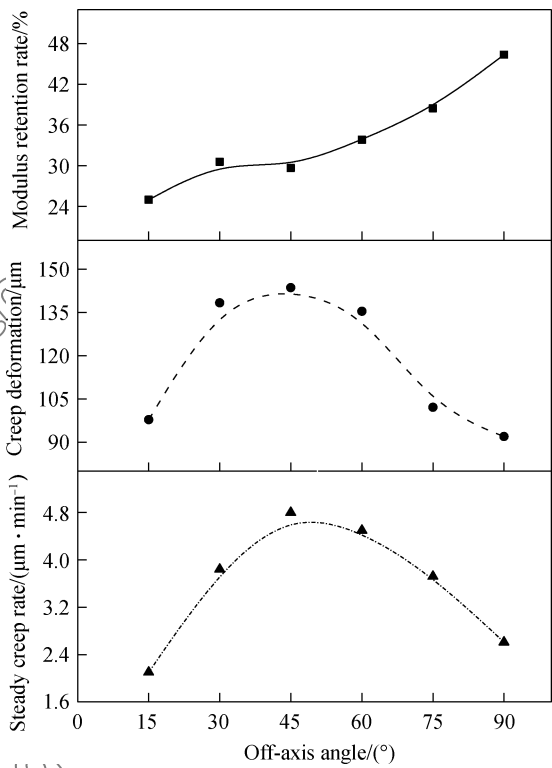


图 12 CGF/PP 复合材料单层板在不同纤维角度上偏轴拉伸蠕变 15 min 后的蠕变模量保留率、蠕变变形量、稳态蠕变速率的变化曲线
Fig. 12 Results about creep modulus retention rate, creep deformation and steady creep rate of CGF/PP composite single layer in different fiber angle over 15 min

区间时, CGF/PP 复合材料单层板在拉伸过程中存在拉-剪耦合效应。基体中起始裂纹尖端承受垂直于纤维方向张开型位移分量和沿纤维方向的滑移型位移分量, 导致裂纹扩展加速^[18-19]。实验表明, 纤维角度为 45° 时, 偏轴拉伸的拉-剪耦合效应最为明显。

运用 Origin 软件对 CGF/PP 复合材料单层板不同纤维方向上的偏轴蠕变实验数据进行拟合, 自定义非线性拟合式(5), 模型参数 E_1 、 E_2 、 η_1 、 η_2 拟合结果如表 4 所示。对比试验与拟合曲线发现, 二者拟合相关系数达到 0.997, 能够准确的反映 CGF/PP 复合材料单层板不同角度拉伸蠕变柔量随时间的变化规律。从表 4 可以看出, 模型参数 E_1 、 E_2 、 η_1 、 η_2 均具有明显的角度依赖性, 随纤维角度的增大而显著减小。

根据复合材料正交线弹性理论^[20], CGF/PP 复合材料单层板的正轴弹性常数由实验测得: $E_1 = 10\ 186\ \text{MPa}$ 、 $E_2 = 137\ \text{MPa}$ 、 $G_{12} = 334\ \text{MPa}$ 、 $\nu_1 = 0.31$, 令 $m = \cos\theta$, $n = \sin\theta$, 则

$$E_x = \left[\frac{1}{E_1} m^4 + \left(\frac{1}{G_{12}} - \frac{2\nu_1}{E_1} \right) m^2 n^2 + \frac{1}{E_2} n^4 \right]^{-1} \quad (10)$$

表 4 CGF/PP 复合材料单层板在 65℃ 下不同角度的偏轴拉伸蠕变 Burgers 模型参数

Table 4 Off-axis creep Burgers modelling parameters of CGF/PP composite single layer in different angle at 65℃

Experiment conditions		E_1 /MPa	E_2 /MPa	$\eta_1/(10^4 \text{ MPa} \cdot \text{s})$	$\eta_2/(10^5 \text{ MPa} \cdot \text{s})$	R^2
Off-axis angle/(°)	Stress/MPa					
0	240.0	10 097.21	6 142.34	94.40	59.10	0.9984
15	9.0	2 863.96	2 202.06	26.60	19.30	0.9973
30	4.8	666.72	836.59	9.61	6.36	0.9976
45	2.7	476.38	417.50	6.04	3.36	0.9986
60	1.8	233.21	333.30	5.85	2.13	0.9986
75	1.2	169.81	340.92	4.10	1.74	0.9990
90	0.9	120.67	291.03	3.81	1.75	0.9981

计算出纤维方向角 θ 变化的偏轴模量 E_x , 将不同角度的偏轴拉伸模量测试结果和模型参数 E_1 的拟合结果与之对比, 结果如图 13 所示。可以看出, 初始蠕变模量的预测值与模型参数 E_1 的拟合结果一致。

运用经验公式对 0°、15°、30°、60°、75°、90° 纤维方向的偏轴拉伸蠕变模型参数进行数值拟合, 拟合结果如图 14、图 15 和图 16 所示。得到 Burgers 模型参数的角度依赖性符合如下公式(单层方向角 θ 取 0°~90°):

$E_2 = 295.7627 + 5850.2368 \times 0.9271^\theta$ (1)

$\eta_1 = 44490.0379 + 899506.1224 \times 0.9107^\theta$ (2)

$\eta_2 = 156464.5098 + 5.7578 \times 10^6 \times 0.9107^\theta$ (3)

为了验证预测模型的正确性, 由以上 4 个公式计算得到 CGF/PP 复合材料单层板在 45° 纤维方向的偏轴拉伸蠕变曲线, 与 15 min 蠕变实验数据相对比, 结果如图 17 所示。分析结果发现, CGF/PP 复合材料的初始柔量的预测值略高于实验值, 整体蠕变行为具有良好的一致性, 该 Burgers 模型参数的纤维角度依赖性数值预测公式能够较好的预测

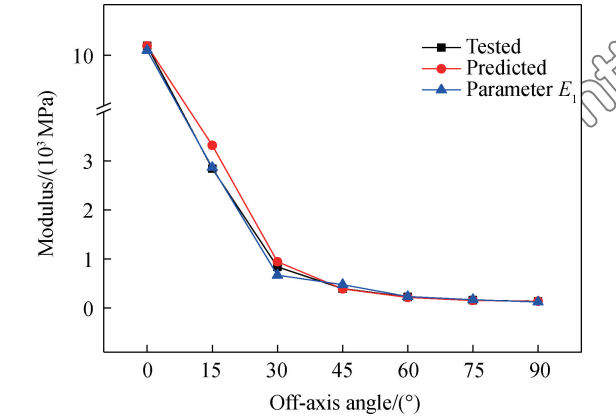


图 13 CGF/PP 复合材料偏轴模量随单层方向角 θ 的变化

Fig. 13 Off-axis modulus of CGF/PP composite in different angle θ

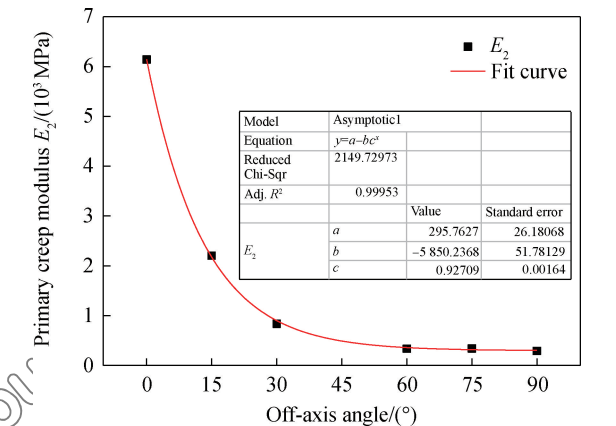


图 14 CGF/PP 复合材料蠕变模型参数 E_2 与偏轴角度的拟合曲线

Fig. 14 Fit curve of CGF/PP composite creep model parameter E_2 with off-axis angle

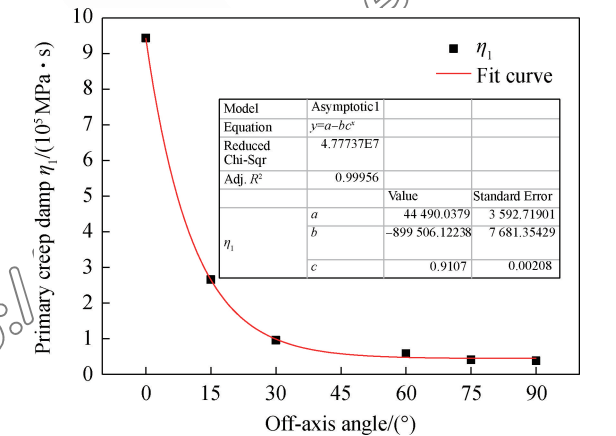


图 15 CGF/PP 复合材料蠕变模型参数 η_1 与偏轴角度的拟合曲线

Fig. 15 Fit curve of CGF/PP composite creep model parameter η_1 with off-axis angle

CGF/PP 复合材料单层板不同纤维角度的拉伸蠕变行为。

4 结 论

(1) 聚丙烯(PP)的拉伸蠕变行为受温度和应力水平影响显著, 温度升高或应力水平增大都将使

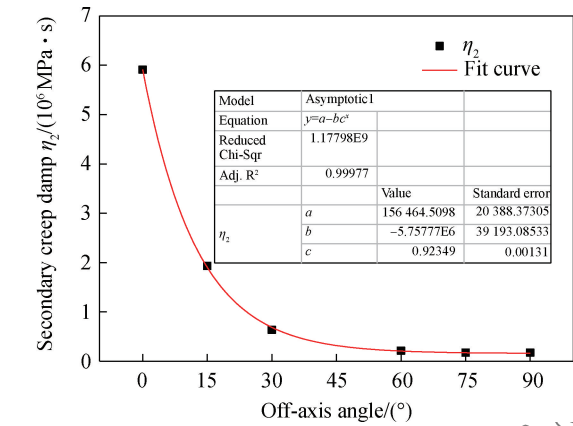


图 16 CGF/PP 复合材料蠕变模型参数 η_2 与偏轴角度的拟合曲线
Fig. 16 Fit curve of CGF/PP composite creep model parameter η_2 with off-axis angle

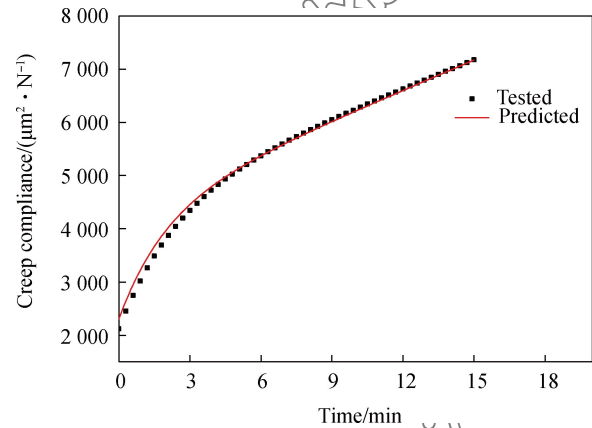


图 17 CGF/PP 复合材料单层板 45° 偏轴拉伸蠕变曲线
Fig. 17 Off-axis creep curve of CGF/PP composite single layer at 45°

PP 分子链的活动能力增强，导致 PP 的抗蠕变性能下降；Burgers 模型可以 99% 准确的拟合 PP 的蠕变行为，模型参数具有明显的应力依赖关系。

(2) 连续玻璃纤维增强聚丙烯基(CGF/PP)复合材料单层板的抗蠕变性能规律和 PP 基体类似，蠕变柔量随加载应力增大而显著减小，加速蠕变段持续时间随之增长，蠕变应变及稳态蠕变速率随之增大；CGF/PP 复合材料单层板 25℃ 时在 14 MPa 恒定应力下蠕变 10 h，在实验组中蠕变现象最为显著；Burgers 模型可以 99% 准确的拟合 CGF/PP 单层板的蠕变行为，应力水平在 2~15 MPa 时，蠕变模型参数可由本文给出的数值预测式(6)、式(7)、式(8)、式(9)确定，实验表明，CGF/PP 复合材料单层板在 10 MPa 恒定应力下蠕变柔量预测结果与实验结果一致。

(3) CGF/PP 复合材料单层板抗蠕变性能随纤维角度 θ 增大呈下降趋势，其稳态蠕变速率和蠕变变形量在纤维方向为 45° 时最大，此纤维方向上偏轴拉伸蠕变的拉-剪耦合效应最为明显；Burgers 模型可以 99% 准确拟合 CGF/PP 复合材料单层板的偏轴拉伸蠕变行为，任意纤维角度的蠕变模型参数可由本文给出的数值预测式(10)~(13)确定，实验表明，CGF/PP 复合材料单层板的 45° 偏轴拉伸蠕变柔量预测结果与实验结果一致。

参考文献：

[1] 叶鼎铨. 玻璃纤维增强热塑性片(板)材发展概况[J]. 玻璃纤维, 2008(3): 28-34.
YE D Q. Development of glass fiber reinforced thermoplastic sheets[J]. Fiber Glass, 2008(3): 28-34 (in Chinese).
[2] 方立, 周晓东, 吴忠泉, 等. 连续玻璃纤维增强聚丙烯复合板材的性能研究[J]. 工程塑料应用, 2012, 40(12): 12-15.
FANG L, ZHOU X D, WU Z Q, et al. Properties of continuous glass fiber reinforced polypropylene laminates[J]. Engineering Plastics Application, 2012, 40(12): 12-15 (in Chinese).
[3] DROZDOV A D. Effect of temperature on the vis-coelastic and viscoplastic behavior of polypropylene[J]. Mechanics of Time-Dependent Materials, 2010, 14(4): 411-434.
[4] 梁军, 杜善义. 粘弹性复合材料力学性能的细观研究[J]. 复合材料学报, 2001, 18(1): 97-100.
LIANG J, DU S Y. Study of mechanical properties of viscoelastic matrix composite by micro-mechanics[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2001, 18(1): 97-100 (in Chinese).
[5] GUEDES R M. Creep and fatigue lifetime prediction of polymer matrix composites based on simple cumulative damage laws[J]. Composites Part A: Applied Science & Manufacturing, 2008, 39(11): 1716-1725.
[6] DASARI A, YU Z Z, MAI Y W. Fundamental aspects and recent progress on wear/scratch damage in polymer nanocomposites[J]. Materials Science & Engineering Reports, 2009, 63(2): 31-80.
[7] FLIEGENER S, HOHE J, GUMBSCH P. The creep behavior of long fiber reinforced thermoplastics examined by micro-structural simulations[J]. Composites Science & Technology, 2016, 131: 1-11.
[8] CHEVALI V S, JANOWSKI G M. Flexural creep of long fiber-reinforced thermoplastic composites: Effect of processing-dependent fiber variables on creep response[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2010, 41(9): 1253-1262.
[9] KAWAI M, MASUKO Y, SAGAWA T. Off-axis tensile creep rupture of unidirectional CFRP laminates at elevated

- temperature[J]. *Composites Part A: Applied Science & Manufacturing*, 2006, 37(2): 257-269.
- [10] GOERTZEN W K, KESSLER M R. Creep behavior of carbon fiber/epoxy matrix composites[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2006, 421(1): 217-225.
- [11] 刘鹏飞, 赵启林, 王景全, 等. 树脂基复合材料蠕变性能研究进展[J]. *玻璃钢/复合材料*, 2013(3): 109-117.
- LIU P F, ZHAO Q L, WANG J Q, et al. Research progress in creep property of resin matrix composites[J]. *Fiber Reinforced Plastics/Composites*, 2013(3): 109-117 (in Chinese).
- [12] 钟铁峰, 杨旦旦, 周小平, 等. 聚合物基复合材料有效蠕变响应与单轴拉伸行为的细观力学模拟[J]. *复合材料学报*, 2016, 33(12): 2911-2917.
- ZHONG Y F, YANG D D, ZHOU X P, et al. Effective creep response and uniaxial tension behavior of polymer matrix composites simulated by mesomechanics[J]. *Acta Materialiae Compositae Sinica*, 2016, 33(12): 2911-2917 (in Chinese).
- [13] 中国国家标准化管理委员会. 单向纤维增强复合材料拉伸性能的测定: GB/T 1040.5—2008[S]. 北京: 中国标准出版社, 2008.
- Standardization Administration of the People's Republic of China. *Plastics: Determination of tensile properties Part 5: Test conditions for unidirectional fiber-reinforced plastic composites: GB/T 1040.5—2008*[S]. Beijing: China Standards Press, 2008 (in Chinese).
- [14] GREBOWICZ J, LAU S, WUNDERLICH B. The thermal properties of polypropylene[J]. *Journal of Polymer Science Polymer Symposia*, 2010, 71(1): 19-37.
- [15] 金日光, 华幼卿. 高分子物理第3版[M]. 北京: 化学工业出版社, 2006.
- JING R G, HUA Y Q. *Polymer physics: Third edition*[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2006 (in Chinese).
- [16] LIU X, HUANG Y, CONG D, et al. Study on the creep behavior of polypropylene. [J]. *Polymer Engineering & Science*, 2009, 49(7): 1375-1382.
- [17] KAWAI M, MASUKO Y. Macro-mechanical modeling and analysis of the viscoplastic behavior of unidirectional fiber-reinforced composites[J]. *Journal of Composite Materials*, 2003, 37(21): 1885-1902.
- [18] PLUMTREE A, CHENG G X. A fatigue damage parameter for off-axis unidirectional fibre-reinforced composites [J]. *International Journal of Fatigue*, 1999, 21(8): 849-856.
- [19] VARVANI-FARAHANI A, HAFTCHENARI H, PANBECHI M. An energy-based fatigue damage parameter for off-axis unidirectional FRP composites[J]. *Composite Structures*, 2007, 79(3): 381-389.
- [20] 沈观林, 胡更开, 刘彬. 复合材料力学第2版[M]. 北京: 清华大学出版社, 2013.
- SHEN G L, HU G K, LIU B. *Mechanics of composite materials: Second edition* [M]. Beijing: Tsinghua University Press, 2013 (in Chinese).