

Fabrication and Mechanical Behavior of Al/APC-2 Hybrid Cross-Ply Nanocomposite Laminates at Elevated Temperature

Ming-Hwa R. Jen, Yi-Chun. Sung, Che-Kai Chang, Yin-Da Lai

Dept. of Mechanical and Electro-Mechanical Engr., National Sun Yat-Sen University, Kaohsiung, Taiwan
Email: jmhr@mail.nsysu.edu.tw

Received: Apr. 11th, 2011; revised: May 15th, 2011; accepted: May 16th, 2011.

Abstract: The innovatively high performance AL/APC-2 hybrid cross-ply nanocomposite laminates were successfully fabricated. The well-known problem of delamination was mostly eliminated by the surface treatment of electroplating of Al 2024 sheets, instead of conventionally chemical etching by CrO₃ etchants. Additions of optimal nanoparticles of SiO₂ into APC-2 cross-ply laminates were used to improve the mechanical properties of hybrid laminates even at elevated temperature. From the received data, the mechanical properties, such as ultimate tensile strength and longitudinal stiffness, of hybrid nanocomposite laminates by electroplating are better than those by chemical etching about 6% to 10%. As for the tension-tension (T-T) constant stress amplitude cyclic tests at elevated temperature, the applies stress vs. cycles (S-N) curves go downwards as the temperature rising. However, the normalized S-N curves, by the corresponding ultimate strength at specific temperature, become mixed together. They are separate at least over 10⁵ cycles. That evidently demonstrate the superior properties of the hybrid nanocomposite laminates have been achieved. Also, no delaminations were found in tensile and cyclic tests at elevated temperature. That significantly shows a nearly perfect bonding in hybrid laminates is made.

Keywords: Aluminum Alloy; APC-2 Prepregs; Hybrid Laminate; Elevated Temperature; Fatigue

铝合金/碳纤维/聚醚醚酮混和十字迭奈米复材积层板之 研制与高温下机械行为

任明华*, 宋宜骏, 张哲恺, 赖盈达

国立中山大学机械与机电工程学系, 高雄, 台湾

Email: jmhr@mail.nsysu.edu.tw

收稿日期: 2011年4月11日; 修回日期: 2011年5月15日; 录用日期: 2011年5月16日

摘要: 创新的超性能 Al/APC-2 混和十字迭奈米复材积层板已成功研制。众所皆知的脱层问题已由铝板的电镀表面处取代传统的铬酸化学蚀刻法大致排除。添加最佳化的二氧化硅奈米颗粒在 APC-2 十字迭层中甚至在高温下都可增强其机械性能。由所得的混和奈米复材积层板之数据, 如拉伸强度与纵向劲度等机械性能可以看出其机械性能较化学蚀刻法强 6%至 10%。至于高温下拉伸-拉伸固定应力振幅疲劳试验, 其应力-振次(S-N)曲线会随着温度上升而下降。然而由相对应温度之极限强度所无因次化的应力-振次曲线混在一起, 而它们在高于 10⁵ 振次后会分开。这充分证明了拥有超强性能的混合奈米复材积层板已完成。并且高温下之拉伸与疲劳试验下皆无脱层, 明显的展现了优良的混和积层板已制作完成。

关键词: 铝合金; APC-2 预浸布; 混和积层板; 高温; 疲劳

1. 引言

“更轻、更薄、更强与更便宜”是现今材料科学与工程上的目标，特别是在奈米尺寸的时代。原子与分子级的工程材料创造了材料与制程上的革命，新的奈米尺寸材料如奈米黏土、奈米碳管跟其它材料的发现，提供了各式各样的新复合材料、黏着剂、涂料与具有特殊性能的密封材料的成功迹象。然而我们的注意力集中于工程应用上的一个小部分，也就是在 APC-2 复合材料迭层中添加奈米颗粒，使其在高温下承受静态与周期负载之机械性能有显著的提升。Hussain 等人^[1-2]发现添加氧化铝颗粒的碳/环氧树脂复材，其机械性能大量增强。Kim^[3]展现出喷洒碳化硅奈米颗粒对接口性质的提升。Lin^[4]研究添加碳化硅奈米颗粒在聚醚醚酮中对磨耗与摩擦的影响。实际上，在聚醚醚酮中混和 15%重量百分比的奈米碳纤维可以使其达到最佳的强度与劲度^[5]。Qi^[6]研究聚合物胶体、中空奈米颗粒及奈米碳管的综合物。Li^[7]提出奈米复材、奈米金属与半导体颗粒的制造与加工法。Jen 等人^[8]发现在 APC-2 迭层中添加重量百分比 1%的二氧化硅奈米颗粒对机械性能有明显的提升。

至今，纤维加强铝合金积层板(FRALL)已经被成功地制造且商品化^[9]，由 Aluminum Company of America 所销售之 Aramid 纤维加强铝合金积层板 (ARALL)与玻璃纤维/铝合金(GLARE)也有在飞机下翼、机身及机尾之蒙皮等广泛的应用^[10]。此外，碳纤维加强铝合金积层板(CARALL)在承受拉伸-拉伸疲劳负载下展现出超强的抗裂缝成长力^[11]。然而，上述提及的 FRALLs 都含有使用温度不能超过 373 K 的环氧树脂，因此它们只能受限在低温下应用。以成功研制镁合金/APC-2 奈米复合材料积层板^[12]的经验为基础，开发出一种超强性能的异向性复材积层板，这是以 2024 铝合金薄板为基底，并与高强度十字迭碳纤维/聚醚醚酮迭成三明治结构，聚醚醚酮在 423 K 下仍能保持它的机械性能，因此假设铝合金/碳纤维/聚醚醚酮复材积层板可以在高温下使用。在此篇论文中，获致高温下承受拉伸及周期测试的机械性能，也观察破坏机制，机械行为的反应也被突显。

2. 实验方法

将单一方向之碳纤维/聚醚醚酮(ICI Fiberite Co.,

USA)预浸布剪裁并堆栈成十字迭积层板[0/90]_s。二氧化硅奈米颗粒(Nanostructured & Amorphous Materials, Inc. USA)之平均直径为 15 ± 5 nm，比表面积为 160 ± 20 m²/g，为球状晶体且不规则状粉末。研究发现最佳的二氧化硅量为积层板的 1%重量百分比(聚醚醚酮重量百分比 3%，纤维体积百分比为 61%)，均匀地喷洒在积层板十个迭层中^[8]。2024 铝合金薄板(Al: 90.7%~94.7%，Cu: 3.8%~4.9%，Mn: 0.3%~0.9%，Mg: 1.2%~1.8%)是由 Thyssen Krupp Materials NA, Inc., USA.提供，滚轧后得到厚度 0.5 厘米，经过加热与钢丝刷刷亮使其平坦。2024 铝合金之密度为 2.78 g/cm³，熔点在 502°C 与 638°C 之间，极限拉伸强度为 469 MPa，弹性模数为 73.1 GPa。

在制作成积层板前，铝合金薄板必须做前处理以使其与 APC-2 预浸布紧密黏合。开始时没有使用化学法，而是用#200 SiC 砂纸做机械抛光，然而其界面的黏结太脆弱而脱层。接着改用化学蚀刻法取代机械抛光，经过一系列的测试，机械拉伸试验的结果证明了铬酸阳极法所处理之表面较好。阳极处理在铝合金表面产生厚度 2~3 μm 的氧化层，阳极氧化层的成分经由 EDS 分析后得知多为氧化铝并含有少于 0.1%的铬。

APC-2 预浸布与铝合金薄板以 Al/APC-2/Al/APC-2/Al 的形式交迭，制作成铝合金/碳纤维/聚醚醚酮混和复材积层板，并且采用修正隔膜成形法，如图 1 所示，固化成型。混和复材试片之几何形状与尺寸如图 2 与图 3 所示。

拉伸试验及固定应力震幅拉伸-拉伸疲劳试验是由 MTS-810 万能材料试验机在应力比 0.1，频率 5 Hz 之正弦波型式下以应力控制模式，并在高温如：25°C (RT), 75°C, 100°C, 125°C, 150°C (稍微高于 APC-2 的玻璃转移温度 143°C)下运作。MTS-651 环境控制箱来控制试片的指定温度。25 mm MTS-634.11F-25 伸长计则是用以持续的监视试验中的应变。

3. 结果

高温下两种表面处理法之 Al/APC-2 十字迭奈米复材积层板之机械性能皆列在表 1。

基于铝合金薄板藉由阳极电镀处理可得到比化学蚀刻法处理机械性能较佳之混和积层板，因此制作程序采用阳极处理法，然后高温下之固定应力振幅之拉

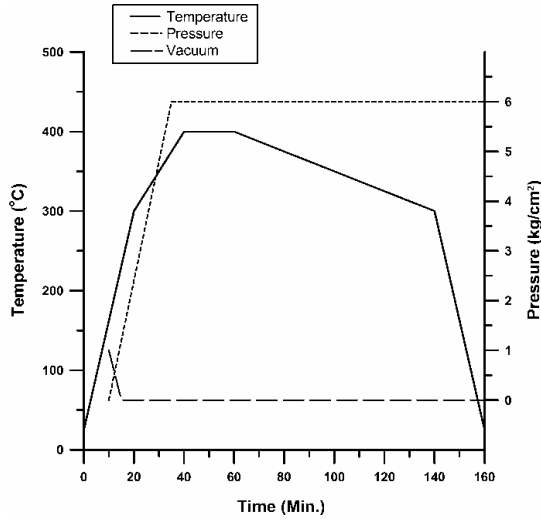


Figure 1. Curing process for Al/APC-2 hybrid nanocomposite laminates
图 1. Al/APC-2 混和奈米复材积层板之成形制程

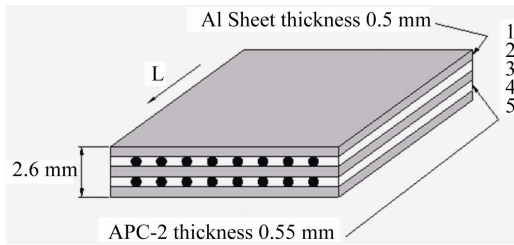


Figure 2. The geometry of a hybrid composites specimen
图 2. 混和复材试片之几何形状

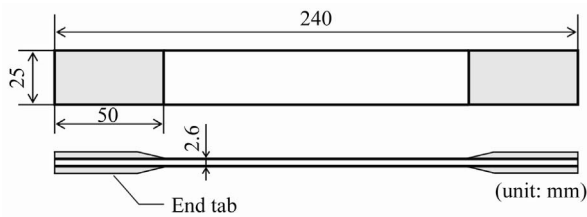


Figure 3. The dimension of a hybrid composites specimen
图 3. 混和复材试片之尺寸

伸-拉伸测试, 结果如图 4(a)所示, 应力-振次(S-N)图。随着温度上升, 曲线有明显下降的趋势是相当合理的。另一方面, 无因次化之应力-振次数图之曲线在小于 10^4 振次有混合的情况, 如图 4(b)所示。并在 10^5 次振次后曲线开始有分离的情形。值得一提的是应力无因次化是由在相对温度下的极限强度所无因次化而非非常温下的。

Table 1. The average mechanical properties of Al/APC-2 cross-ply nanocomposite at elevated temperatures with two different surface treatments of Al 2024 sheets

表 1. 高温下有两种不同表面处理法之 2024 铝板的 Al/APC-2 十字迭奈米复材积层板之机械性能平均值

Treatment	Chromic acid anodic method			Chemical etching method		
	Properties					
Temperature	P_{ult} (KN)	σ_{ult} (MPa)	E_{11} (GPa)	P_{ult} (KN)	σ_{ult} (MPa)	E_{11} (GPa)
25°C	36.09	555.23	37.09	34.73	525.84	36.16
75°C	35.61	547.80	40.00	33.82	512.11	37.24
100°C	38.27	588.72	40.34	31.69	479.91	36.99
125°C	36.73	565.13	41.27	32.72	495.51	36.67
150°C	33.55	516.15	40.70	31.97	484.10	36.88

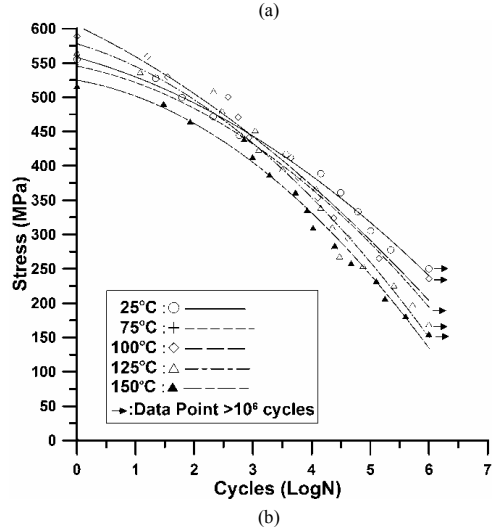
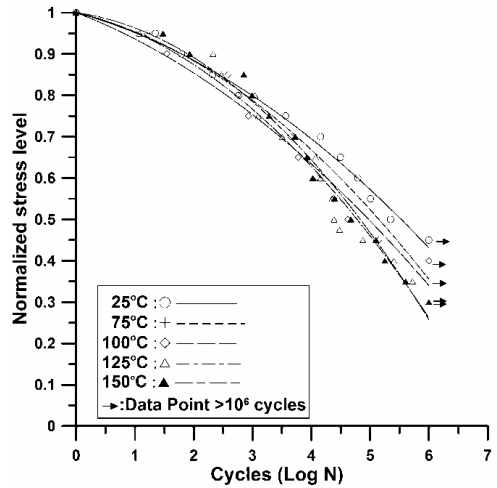


Figure 4. The (a) S-N curves and (b) normalized S-N curves of Al/APC-2 cross-ply nanocomposite laminates at elevated temperatures

图 4. 高温下 Al/APC-2 十字迭奈米复材积层板之(a)S-N 曲线与(b) 无因次化 S-N 曲线

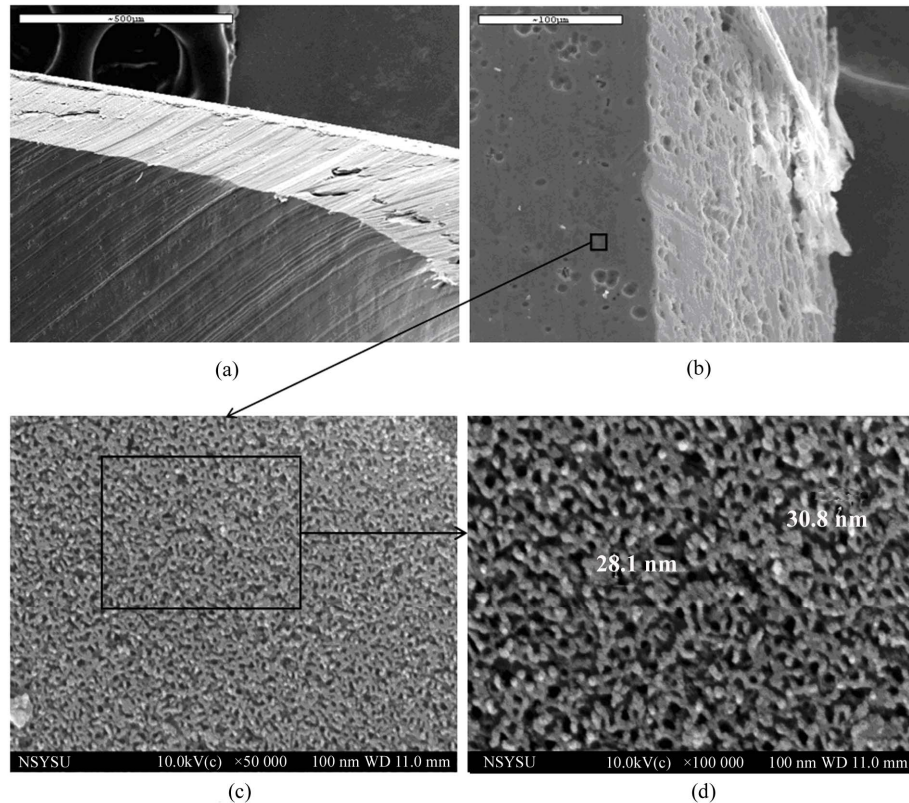


Figure 5. The surface of Al sheet (a) without surface treatment, cell base structure by anodic method (b) x500 (c) x50000 (d) x100000
 图 5. 铝板表面 (a)无表面处理, 阳极处理之细胞基座结构 (b)x500 (c)x50,000 (d)x100,000

4. 讨论

由先前制作 Mg/APC-2 奈米复材积层板的经验, 由于有 15% 的试片会脱层, 因此以化学蚀刻表面处理的试片可能是失败的。在此, 采用阳极电镀方法取代传统的化学蚀刻。两种表面处理法所得之机械性能平均值都列入表 1, 以凸显材料性能的提升, 例如纵向劲度和极限拉伸强度。更重要的是, 即使在高温的拉伸和疲劳实验, 用阳极电镀制程所做出的试片没有脱层的情形。成功的 Al/APC-2 混合积层板制程, 确认了铝合金与 APC-2 间几乎完美的黏合与混和积层板有更好的性能。图 5 为经由阳极处理法之铝板表面之 SEM 图, 其表面相当均匀。

有趣的是, 所观察到的纵向劲度趋势没有随着温度升高而逐渐递减, 而极限拉伸强度除了在 150°C 时有少于 10% 的下降外, 其它是几乎不变的。S-N 曲线会随温度升高而向下递减一般来说是合理的, 而应力以常温之极限强度无因次化后, 也会以同样的方式呈现。然而, 在每一特定的温度中, 无因次化 S-N 曲线

位置会与无因次化极限强度紧密在一起, 这充分证明其机械性质已获得改善。

5. 结论

铝合金/APC-2 奈米复材积层板已成功研制, 其高温下之拉伸与疲劳试验机械性能已获得。就试片的机械性质而言, 阳极电镀法处理之表面明显优于化学蚀刻法。此外, 拉伸与疲劳试验没有发现脱层情形。无因次化的 S-N 曲线在小于 104 振次会非常接近而在 105 振次后会稍微分开, 这显然证明了创新研制的混合积层板在高温下具有抵抗疲劳负载的能力且拥有超强的性能。

6. 致谢

感谢由国科会的赞助, 计划编号 NSC97-2221-E-110-020。

参考文献 (References)

- [1] M. Hussain, A. Nakahira, K. Niihara. Mechanical Property Im-

- provement of Carbon Fiber Reinforced Epoxy Composites by Al₂O₃ Filler Dispersion. *Materials Letter*, 1996, 26(3): 185.
- [2] A. Nakahira, K. Niihara. Control of Water Absorption and Its Effect on Interlaminar Shear Strength of CFRC with Al₂O₃ Dispersion. *Materials Science and Engineering A*, 1999, 272(2): 264.
- [3] K. H. Kim. Study of Fiber/Matrix Interface in SiC Fiber Reinforced Calcium Aluminosilicate Matrix Composite. New Jersey: Stevens Institute of Technology, 1993.
- [4] J. Lin. Synthesis and Phase Behavior Investigations of Inorganic Materials in Organic Polymer Solid Matrices. Pennsylvania: The Pennsylvania State University, 1992.
- [5] Q. H. Wang, Q. J. Xue, W. M. Liu, et al. The Friction and Waer Characteristics of Nanometer SiC and Polytetrafluoroethylene Filled Polyetheretherketone. *Wear*, 2000, 243(1-2): 140.
- [6] Z. Qi. Synthesis of Conducting Polymer Colloids, Hollow nano-paritcles, and nanofibers. Canada: McGill University, 1993.
- [7] T. Li. Fabrication and Characterization of Nanometer-sized Metal and Semiconductor Particles and Nano-sized Composites. Gainesville: University of Florida, 1996.
- [8] M.-H. R. Jen, Y.-C. Tseng, C.-H. Wu. Manufacturing and Mechanical Response of Nanocomposite Laminates. *Composites Science and Technology*, 2005, 65(5): 775-779.
- [9] L. B. Voegesang, J. W. Gunnink. ARALL A materials challenge for the next generation of aircraft. *Mater. & Design*, 1986, 7(6): 287-300.
- [10] T. Lin, P. W. Kao, F. S. Yang. Fatigue behaviour of carbon fibre-reinforced aluminium laminates. *Compos.*, 1991, 22(2): 135-141.
- [11] T. Lin, P. W. Kao. Effect of fiber bridging on the fatigue crack propagation in carbon fiber-reinforced aluminum laminates. *Material Science Engineering A*, 1995, 190(1-2): 65-73.
- [12] M.-H. R. Jen, Y.-C. Tseng, P.-Y. Li. Fatigue response of hybrid magnesium/carbon-fiber/peek nanocomposite laminates at elevated temperature. *Journal of JSEM*, 2007, 7(Special Issue): 56-60.
- [13] T. E. Attwood, P. C. Dawson, L. J. Freeman, et al. Synthesis and properties of polyaryletherketones. *Polymer*, 1981, 22(8): 1096-1103.
- [14] P. C. Dawson, D. J. Blundell. X-ray data for poly (aryl ether ketones). *Polymer*, 1980, 21: 577-578.