

凹凸棒增强聚丙烯复合材料 断裂韧性和断面分维的相关性*

戴兰宏

(中国科学院力学研究所, 北京100080)

吴国璋

(合肥工业大学数力系, 合肥230009)

摘要 本文应用William s 新近提出的方法, 研究了凹凸棒增强聚丙烯复合材料的冲击断裂韧性(G_c)。通过测试断面的轮廓线, 采用一种改变粗视化程度的方法, 确定出断面的分维。结果表明, 断裂韧性和断面分维存在一定的相关性, 并就此进行简要讨论。

关键词 凹凸棒, 复合材料, 断裂韧性, 分维

自Mandelbrot^[1]开创性工作以来, 越来越多的研究结果表明^[2-6], 材料的几何结构及其某些物理性能, 在临近断裂时所表现出的异常行为, 往往满足一定的标度关系。许多材料的断口表面在一定的标度范围内呈现分形特征, 而且发现, 断面分维与材料的某些宏观力学参数之间具有一定的相关性。这预示着, 分形理论有可能成为人们探索材料断裂破坏机理及其复杂性的一个有力工具。

然而, 迄今为止, 众多的研究工作集中在金属、岩石类材料上, 而对现代工业和高技术领域日益发挥重要作用的复合材料研究甚少^[7-9]。事实上, 大量的实验研究表明^[10], 复合材料微观结构及其在断裂破坏过程中所反映出的复杂行为是有可能用分形理论予以研究的。

据此, 本文针对凹凸棒(Attapulgite, 简记为AT)增强聚丙烯(Polypropylene, 简记为PP)复合材料(记为PP/AT), 首先用William s 等人^[11,12]提出的新方法, 测定了PP/AT复合材料的冲击断裂韧性(G_c), 采用一种改变粗视化程度的方法, 确定出断口表面的分维(D)。结果显示, G_c 和 D 存在一定的相关性, 并简要讨论了这种相关性。

1 实验部分

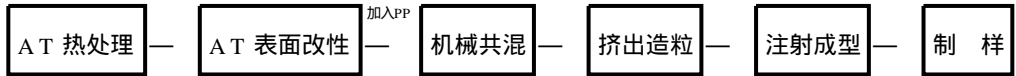
1.1 材料与试样

凹凸棒(AT)是新近开发出的一种无机矿物粘土, 由于它具有较大的比表面积及良好的稳定性及分散性, 采用适当的表面改性技术对其进行表面处理, 可将其用做高分子材料(如PP)的优良填充剂, 从而能够改善高分子材料的某些力学性能(如强度、断裂韧性等)。

本实验所用的凹凸棒系皖嘉山凹凸棒石粉厂产品, 其主要化学成份为: 58.50% SiO_2 、14.54% MgO 、14.54% CaO 、6.09% Al_2O_3 、3.00% Fe_2O_3 、3.23% 其他成份。实验所用的聚丙烯(PP)为安庆石化厂产品。将处理好的AT与PP机械共混造粒, 经注射成型后, 在标准制样机

* 本文于1995年5月24日收到修改稿, 1995年1月25日收到初稿

上制备出三点弯曲 Charpy 冲击样条,具体的工艺线路为



共制备了六种 AT 含量 (0、10w t%、15w t%、20w t%、30w t%、40w t%) 的 PP/AT 复合材料 Charpy 冲击样条 (图1)。为了测定其断裂韧性 (G_c), 实验前需在每个试样中间用铣刀开直通缺口, 并用刮脸刀片压入 0.5mm 左右, 得到预制尖锐裂纹, 用读数显微镜精确测量裂纹深度 a , 控制 $a/H = 0.2 \sim 0.6$ 。

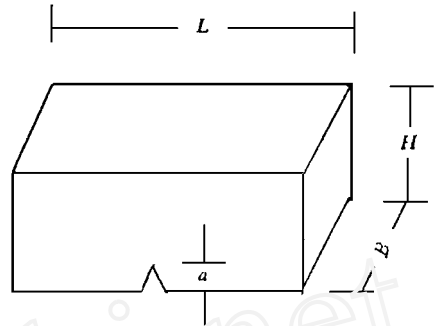


图1 Charpy 冲击样条

1.2 PP/AT 复合材料断裂韧性 (G_c) 测试

聚合物高分子材料虽然在常温、缓慢加载条件下, 呈现韧性破坏, 但是在动态冲击载荷作用下, 却表现出脆性破坏特征。在加载速度不高的 Charpy 冲击实验条件下, 可用线弹性断裂力学 (LEFM) 表征其断裂韧性。

在 LEFM 条件下, 对于尖锐缺口三点弯曲 Charpy 冲击样条 (图1), Williams 等人^[11,12]将冲击功表示为

$$U = G_c \cdot B H \Phi \quad (1)$$

式中: B 、 H 分别是试样的厚和高, Φ 为形状修正因子, 在跨距比 S/L 一定的条件下, Φ 仅为 a/H 的函数, 可查表或计算求得^[11]。 U 为测量的冲击功, 实际测量时, U 取摆锤初始位置和打击后最终位置的势能差。于是, 通过对不同 a/H 试样进行冲击实验, 测量相应的冲击功 U 和缺口深度 a , 由 U 对 $BH\Phi$ 线性回归作图, 求得直线的斜率即为断裂韧性 G_c 。

1.3 PP/AT 复合材料断口表面分维的测定

断口表面分维的测定方法, 最为常用的莫过于所谓的“小岛法”(Slit Island Method——SM) 和断裂剖面法 (Fracture Profile Method——FPM)^[1]。但由于这些方法需要对断口表面进行磨削或切削, 致使断口原始形貌不同程度地受到破坏, 从而产生一定的实验误差。为此, 本文采用一种简便、实用的改变粗视化程度的方法, 很方便地确定出断面分维。

对于图2所示的分形曲线, 首先把曲线一端作为起点, 然后, 以此点为中心画一个半径为 r 的圆。把此圆与曲线最初交点和起点用直线连接起来, 再把此交点重新看作起点, 以后反复进行同样的操作。像这样用长度为 r 的折线去近似分形曲线时, 将所需要的线段总数记为 $N(r)$ 。显然, 改变基本长度 r (粗视化程度), $N(r)$ 也相应随之变化。对于分维数为 D 的分形曲线, 则有^[13]

$$N(r) \cdot r^D = 1 \quad (2)$$

$$D = [\log N(r)] / [\log(1/r)] \quad (3)$$

实验时, 每种材料选取三个试样, 在断口裂纹稳定扩展区, 沿垂直于裂纹扩展方向, 用

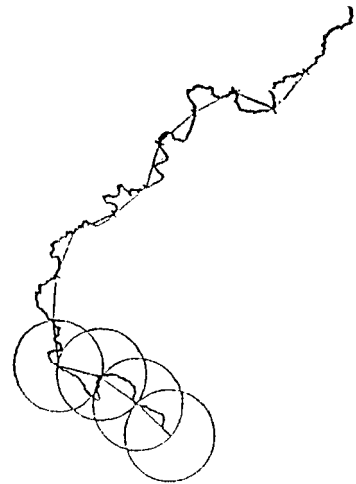


图2 改变粗视化程度测分维

Taylor surf-6型电子轮廓仪无磨损地测取断面轮廓线。应用上述改变粗视化程度方法,改变粗视化程度 r , 测出所需的线段数 $N(r)$, 由(3)式通过作图确定出断面轮廓线的分维 $D^{[10]}$ 。

2 结果与讨论

2.1 断裂韧性(G_c)测试结果与分析

PP/AT 复合材料断裂韧性(G_c)的测试结果列入表1。结果表明,随着AT的加入,PP/AT 复合材料的断裂韧性较基体PP有明显的增加。在AT含量为20wt%~30wt%附近, G_c 取得最大值,而再增加AT含量,则 G_c 开始下降。图3给出AT含量对 G_c 的影响。

表1 PP/AT 复合材料 G_c

编号	材 料	$G_c / \text{kJ} \cdot \text{m}^{-2}$	样品数	相关系数/%
1	PP	2.16	9	85.9
2	PP/AT 10wt%	3.17	9	84.8
3	PP/AT 15wt%	3.82	9	88.0
4	PP/AT 20wt%	4.35	9	78.7
5	PP/AT 30wt%	4.65	9	95.2
6	PP/AT 40wt%	3.52	9	81.4

颗粒增强复合材料的增韧机理是个复杂有待深入研究的课题。目前普遍为人们接受的是剪切屈服或银纹化理论。据此理论,在PP中加入AT之后,由于AT颗粒起到应力集中点作用,在一定条件下,颗粒周围剪切应力将使与之相连的基体发生局部屈服,吸收较多能量,从而使PP/AT复合材料的 G_c 得以提高。随着AT含量的增加,由于其粒度不变,所以AT颗粒间基体层厚度减小,从而引起应力场的相应叠加,这将更有利于基体局部屈服,吸收更多的能量,使断裂韧性 G_c 进一步提高。但AT本身不发生塑性变形,其含量增加意味着基体数量减少,当AT含量增加到一定值时,基体总吸收能量也相应减少。当AT含量达

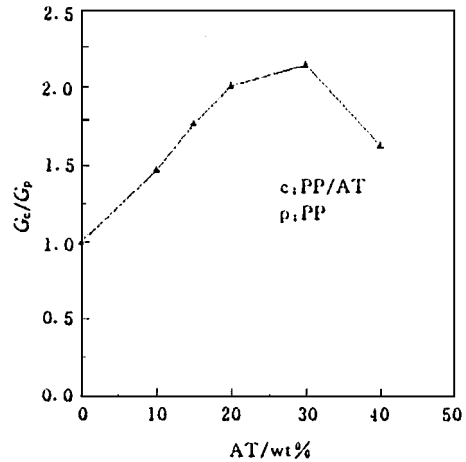


图3 AT含量对 G_c 影响

40wt%时,PP/AT的 G_c 开始下降可能归于此原因。因此,欲提高PP/AT的 G_c ,必须使AT含量控制在最佳范围内,本实验结果显示,AT含量在20wt%~30wt%左右时,增韧效果最好。

从本实验结果来看,AT颗粒填充PP后增韧效果与文献[16]报道的 CaCO_3 颗粒填充PP的增韧效果大体相当。实际上,颗粒增强高分子复合材料的增韧效果的影响因素很多,如颗粒的成份、大小、形状以及表面改性技术等,因此这是一个需要深入研究的问题。

由于本实验冲击断裂韧性 G_c 的获得是基于LEFM理论的,没有考虑应力波及惯性效应,这对实验结果可能会产生一定的影响。但由于本实验中Charpy冲击速度较低($< 6\text{m/s}$),可以忽略应力波在试样中的波动效应。虽然我们在计算冲击功 U 时忽略了试样冲断后的动能项,但Marshall等人^[12]研究表明,动能修正后对 $U-BH$ Φ 直线斜率影响很小,即对断裂韧性 G_c 影

响很小。因此,本实验方法仍能较准确地表征 PP/AT 复合材料的断裂韧性。

2.2 断面分维及其与断裂韧性的相关性

PP/AT 复合材料断口表面轮廓线的分维测试结果列入表2。

表2 PP/AT 复合材料断面分维 D

试样号	PP					
	AT 10w t%	AT 15w t%	AT 20w t%	AT 30w t%	AT 40w t%	
1	1.027	1.077	1.182	1.227	1.276	1.155
2	1.051	1.083	1.169	1.218	1.283	1.152
3	1.036	1.085	1.166	1.214	1.284	1.148
平均	1.038	1.082	1.172	1.220	1.281	1.152

从实验结果来看,纯基体 PP 断面分维 D 最小,随着 AT 加入,PP/AT 复合材料断面分维有所增加,而当 AT 含量为 40w t% 时,断面分维也有所减少。这说明,断面分维 D 较敏感地反映了断裂韧性 G_c 的变化,二者存在良好的相关性(图 4)。

在 LEFM 中, Irwin 曾给出裂纹临界扩展力准则:

$$G_{\infty} = 2\gamma_s \quad (4)$$

式中 γ_s 为了单位宏观度量面积的表面能,而上式是基于材料断裂表面是平滑假设上建立起来的。实际上,材料断裂表面往往粗糙不平的,而且在一定标度范围内具有分形特征。若计及分形效应, Irwin 准则可修正为

$$G_{cf} = G_{\infty} \epsilon^{1-D} \quad (5)$$

式中 ϵ 为标度, D 为断面分维。将(5)式两边取对数,可见 G_{cf} 与 D 为线性正比关系。

$$\log G_{cf} = (1 - D) \log \epsilon + C \quad (6)$$

我们知道,材料断口不仅与材料的微观结构(如晶粒、二相夹杂等)及宏观结构(如样品尺寸、形状等)有关,而且与外部加载方式和环境条件等因素有关,而断口形貌正是这些因素影响的综合反映。根据 LEFM,材料断裂表面粗糙度,反映材料断裂过程中消耗能量的高低,而断面分维是断面粗糙度的一种度量。这意味着,断面分维和反映材料在断裂过程中吸收能量大小的断裂韧性之间应存在类似(6)式的正比关系。

我们的实验较好地反映了上述思想。纯基体 PP 的断口最为平整,断面分维和断裂韧性均最小。随着 AT 的加入,由于 AT 颗粒应力集中引起基体产生剪切屈服,断裂过程中消耗能量增加,断口较粗糙,因而断面分维和断裂韧性均相应增加。然而,当 AT 含量增到一定值后,由于应力场的叠加及大量第二相(AT 颗粒)的加入,使连续相(基体 PP)变薄;从而断裂更容易发生,断口也变得“平整”些,消耗能量也有所减少。当 AT 含量达 40w t% 时,PP/AT 复合材料表现出的行为可能就是这个原因。

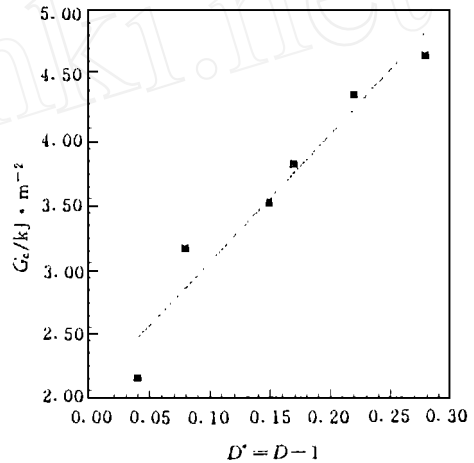


图4 G_c 和 D 的相关性

值得注意的是,在分形用于材料断裂韧性的研究中,部分研究者曾得出与常识不相附的结论,即断裂韧性与断面分维成反比的关系,特别对同一样品,还得到两个完全不同的结论,这的确令人迷惑不解。董连科^[14]将这种现象称为不定性问题。文献[14]认为,分形用于材料断裂韧性的研究,必须坚持物理、断裂力学与分形理论三者自洽的原则,以保证理论研究的完备性。笔者认为,目前测试断面分维的方法很多,有些方法(如SM)不仅操作繁杂,而且可靠性也值得怀疑。由于材料微结构及性质千差万别,是否存在一种对各种材料均适用的分维测试方法,值得深究。此外,新近的研究表明^[15],材料断口表面往往呈现多重分维(multifractal dimension)特征,并不是这些分维都能敏感地反映材料的宏观力学性能。到底哪些分维数与材料宏观性能密切相关?怎样确定之?这确实是一件极其复杂的事情。由此看来,分形用于材料断裂韧性的研究在许多方面还有待于进一步深化。

参 考 文 献

- 1 Mandelbrot B B, Passeja D E, Paullay A J. *Nature*, 1984, 308: 721
- 2 Underwood E E, Banerji K. *Mater Sci Eng*, 1986, 80: 1
- 3 Mechofsky J J. *J Am Ceram Soc*, 1989, 72: 60
- 4 卢春生,白以龙.材料损伤断裂的分形行为.力学进展,1990,20:1
- 5 谢和平,陈至达.力学学报,1998,20:264
- 6 Mu ZQ, Lung C W. *J phys D*, 1988, 21: 848
- 7 刘一华,吴国璋.玻璃钢/复合材料,1992,1:34
- 8 林光明,曾汉民,章明秋.复合材料学报,1993,10(2):13
- 9 费维栋,蒋向东,等.复合材料学报,1993,10(4):109
- 10 戴兰宏.复合材料断裂破坏的Fractal分析.[学位论文].合肥:合肥工业大学,1992
- 11 Williams, *et al*. *Poly Eng Sci*, 1975, 15: 470
- 12 Marshall G P, Williams J G, *et al*. *J Mat Sci*, 1973, 8: 949
- 13 Mandelbrot B B. *The Fractal Geometry of Nature*. New York: W H Freeman, 1982
- 14 董连科.分形理论及其应用.沈阳:辽宁科学技术出版社,1991.191
- 15 Williford R E. *Scripta Metall*, 1988, 22: 1749
- 16 徐昌华,陈士娟,唐坤荣.塑料工业,1992(1):39

RELATION BETWEEN FRACTURE TOUGHNESS AND FRACTAL DIMENSION OF FRACTURE SURFACE FOR PP/AT COMPOSITES

Dai Lanhong

(Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

Wu Guozhang

(University of Polytechnlogy of Hefei, Hefei 230009)

Abstract Fracture toughness of PP/AT Composites was studied by means of the method created by Williams, *et al* which was developed on the basis of LEFM. By utilizing a simple and economical method in which varying measure scales are required, the fractal dimension of fracture surfaces can be determined conveniently. After relating fractal dimension to fracture toughness, it is found that the fractal dimension increases with increasing fracture toughness. This means that fracture toughness can be inferred by the fractal dimension of fracture surface.

Key words attapulgite, composites, fracture toughness, fractal dimension