

# 颗粒增强复合材料中内应力的细观力学模型

潘颖<sup>1</sup>, 丁雁生<sup>2</sup>, 蔡瑞娇<sup>3</sup>

(1 北京航空材料研究院, 北京 100095; 2 中国科学院力学研究所, 北京 100080;

3 北京理工大学, 北京 100081)

**摘要** 基于复合材料细观力学, 针对颗粒高度填充聚合物基复合材料, 本文首次提出了接触模型。这个模型与胞元模型<sup>[1]</sup>相结合, 揭示了压制成型的颗粒填充聚合物基复合材料内应力的成因, 即两相材料模量失配、热膨胀失配和颗粒形状失配。研究表明, 接触应力集中于两颗粒接触面; 颗粒高度填充复合材料细观应力的最大起伏, 可能是取决于颗粒的接触应力。

**关键词** 颗粒填充复合材料 细观力学 内应力 接触模型

## 0 前言

基于复合材料细观力学, 在显微观察<sup>[2]</sup>基础上, 定性讨论热压成型的颗粒填充聚合物基复合材料的内应力成因。

按照复合材料力学的观点, 加压保温时, 聚合物包覆层受热软化, 因高压作用在颗粒间隙中流动。这时聚合物不能承受剪切力。在卸压降温过程中, 一方面两相材料受冷收缩, 另一方面两相材料又卸压膨胀。这时聚合物逐渐能够承受剪切力。因两相材料的模量和线胀系数不同, 在压力与温度改变时变形不协调, 使刚刚热压成型的复合材料就已经产生内应力, 或说就已经有残余应力。本文作者采用复合材料力学常用的胞元模型, 讨论了两相模量和热膨胀失配产生内应力的机制<sup>[1]</sup>。本文针对颗粒高度填充复合材料的特点, 首次提出用接触模型讨论颗粒形状失配产生内应力的机制。为避开随机性增加的麻烦, 只讨论规则几何形状的问题。

M.Shimbo<sup>[3]</sup>等对一系列热固性环氧树脂固化过程中的体积收缩和产生的内应力机理作了定量研究。他们的实验结果, 可用于讨论胞元模型和接触模型。

## 1 接触模型

本文定性地讨论接触对颗粒高度填充复合材料内应力的影响。

考虑未包覆的颗粒, 它们自然堆积时孔隙率为 $\phi_0$ 。采取某些措施, 如震动、加压等, 总能使该类

颗粒达到在一定压紧力下的最密堆积, 相应的孔隙率为 $\phi_m$ 。当 $1-\phi_0 > V_f$ 时, 复合材料的颗粒间可能无接触。而高聚物粘结炸药这类颗粒高度填充复合材料, 有

$$1-\phi_0 < V_f < 1-\phi_m$$

意即材料压制成型时总有颗粒会直接接触, 发生接触应力。由于粘结剂对颗粒的包覆率达不到100%<sup>[4]</sup>, 且粘结剂含量少于 $1-V_f$ , 高聚物粘结炸药中颗粒间接触的机会更多。

试用等径球密堆积(图1)弹性模型定性估计颗粒接触对颗粒高度填充复合材料内应力的影响。

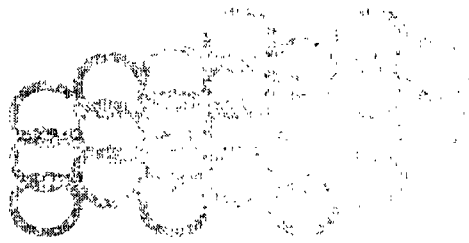


图1 等径球密堆积

考虑一水平密排球粒如上图1, 在其上下每隔一空隙中排布另一水平层球粒, 上层空隙与下层空隙恰错一个位置。在球间隙含有一定量的粘结剂。如果没有粘结剂, 这样的几何结构完全压实后, 球粒将变成一种六棱十二面体。这就是本文讨论的等径球密堆积图象。

从一个球看, 它受到上下邻层各三个球的压迫, 在上下 $60^\circ$ “纬度”线上各有三个接触点(第一类接触点), 上下触点的“经度”依次错开 $60^\circ$ ; 它还受到同层相邻六个球的约束, 在“赤道”线上

有六个接触点(第二类接触点)。

60°“纬度”线上各接触点的法向作用力记为  $P_1$ ，“赤道”上六个接触点的法向作用力记为  $P_2$ 。如图 2 所示。

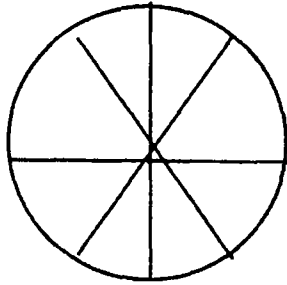


图 2 第一类接触点和第二类接触点分布

假设压制成型时，接触面内的粘结剂都被挤出；球粒“赤道”线上接触点受到刚性约束，沿上下方向的平均压强为  $\sigma_p$ ；载荷较小，接触点邻域材料仍处于弹性变形范围。

在加压保温时忽略粘结剂受力。于是，

$$P_1 = \frac{2\pi}{3\sqrt{3}} R^2 \sigma_p \quad (1)$$

$$P_2 = \frac{1}{3\sqrt{3}} \left( \frac{2\sqrt{3}\nu}{1-\nu} - 1 \right) \pi R^2 \sigma_p \quad (2)$$

式中， $R$  为球粒半径； $\nu$  为材料泊桑比。

按 Hertz 的弹性接触理论<sup>[5]</sup>，第一类接触点的接触圆半径为

$$a_1 = R \left[ \frac{\pi(1-\nu^2)}{\sqrt{3}E} \sigma_p \right]^{1/2} \quad (3)$$

式中， $E$  为颗粒材料的杨氏模量。在该接触圆上接触应力呈二次曲线分布，其应力峰值为

$$P_{m1} = \frac{3P_1}{2\pi a_1^2} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left( \frac{R}{a_1} \right)^2 \sigma_p \quad (4)$$

两球心接近的距离为  $\delta = R \left( \frac{a_1}{R} \right)^2$ 。由此折算，在压制方向材料长度的变形量应为  $\Delta = \delta \cos 30^\circ = \frac{\sqrt{3}}{2} R \left( \frac{a_1}{R} \right)^2$ ，折算的材料的压缩应变为  $\varepsilon = \frac{\delta}{2R} = \frac{1}{2} \left( \frac{a_1}{R} \right)^2$ 。

同样，对第二类接触点有

$$a_2 = R \left[ \frac{\pi(1+\nu)[\nu(2\sqrt{3}+1)-1]}{2\sqrt{3}E} \sigma_p \right]^{1/2} \quad (5)$$

$$P_{m2} = \frac{3P_2}{2\pi a_2^2} = \frac{1}{2\sqrt{3}} \left( \frac{2\sqrt{3}\nu}{1-\nu} - 1 \right) \left( \frac{R}{a_2} \right)^2 \sigma_p \quad (6)$$

由于材料横向膨胀，“赤道”处材料的径向压缩应变变为  $\frac{\Delta R}{R} = \frac{1}{2} \left( \frac{a_2}{R} \right)^2$ 。

在卸压降温时，压制应力卸到  $\sigma_{p0}$ ，温度在  $\Delta t$  期间由  $T$  降到  $T_0$ ；粘结剂玻璃化，逐渐有能力承受剪切。设  $\Delta\sigma_p = \sigma_p - \sigma_{p0}$ ， $\Delta T = T - T_0$ 。这时，作用在接触点的集中力为

$$P_{i0} = \frac{2\pi}{3\sqrt{3}} R^2 \sigma_{p0} + \hat{P}_i \left( \Delta\sigma_p, \frac{\Delta T}{\Delta t} \right) \quad (7)$$

$$P_{20} = \frac{1}{3\sqrt{3}} \left( \frac{2\sqrt{3}\nu}{1-\nu} - 1 \right) \pi R^2 \sigma_{p0} + \hat{P}_2 \left( \Delta\sigma_p, \frac{\Delta T}{\Delta t} \right) \quad (8)$$

式中右端第二项表示粘结剂变形对接触点产生的附加集中力。该附加力满足条件  $\hat{P}_i(0, 0) = 0$ ，

$i = 1, 2$ 。如果先卸载后降温， $\hat{P}_i \left( \Delta\sigma, \frac{\Delta T}{\Delta t} \right)$  较小；

先降温后卸载， $\hat{P}_i \left( \Delta\sigma, \frac{\Delta T}{\Delta t} \right)$  相当大。如果

$\Delta t_1 < \Delta t_2$ ，则  $\hat{P}_i \left( \Delta\sigma, \frac{\Delta T}{\Delta t_1} \right) > \hat{P}_i \left( \Delta\sigma, \frac{\Delta T}{\Delta t_2} \right)$ 。

由于卸载降温，接触圆半径缩小到  $a_{10}$ 、 $a_{20}$ ：

$$a_{10} = R \left[ \frac{\pi(1-\nu^2)}{\sqrt{3}E} \left( \sigma_{p0} + \frac{3\sqrt{3}}{2\pi R^2} \hat{P}_1 \right) \right]^{1/2}$$

$$a_{20} = R \left[ \frac{\pi(1+\nu)[\nu(2\sqrt{3}+1)-1]}{2\sqrt{3}E} \right]$$

$$\left( \sigma_{p0} + \frac{3\sqrt{3}}{\pi R^2} \frac{1-\nu}{\nu(2\sqrt{3}+1)-1} \hat{P}_2 \right)^{1/2}$$

这时，粘结相也体积收缩，会在接触圆周围产生尺度为  $a_1 - a_{10}$ 、 $a_2 - a_{20}$  量级的环形缝隙；紧邻环隙的粘结剂受到极大拉伸或者已被拉裂，该处发生拉应力集中。

## 2 讨论

综合上述情况，可以看到接触造成的两个特征：

(1) 颗粒间相互作用力发生应力集中。在加压保温阶段，两类接触应力集中系数与  $R/a$  的平方成比例，即

$$\frac{p_{m1}}{\sigma_p} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left( \frac{R}{a_1} \right)^2,$$

$$\frac{p_{m2}}{\sigma_p} = \frac{1}{2\sqrt{3}} \left( \frac{2\sqrt{3}\nu}{1-\nu} - 1 \right) \left( \frac{R}{a_2} \right)^2$$

通常,  $R$  比  $a$  会大一个量级。因此, 接触应力峰值会比压制应力大两个量级。集中应力足够大时会使颗粒发生局部剪切破坏或整体开裂。

在卸载降温阶段, 接触压应力被削弱, 但在接触面外侧的粘结剂中可能发生拉应力集中(甚至已使粘结剂局部拉坏)。

(2) 颗粒间发生缺陷。在加压保温阶段, 接触面处粘结剂被挤出。在卸载降温阶段, 接触面部分张开, 粘结相体积收缩, 在接触面外围会产生环形空隙, 使材料孔隙率增加。若假设在加压保温阶段, 接触面处只是部分粘结剂被挤出, 仍留有一层粘结剂薄膜。则在卸载降温阶段, 该薄膜外沿将受到强拉伸, 超过拉伸极限时开裂(断裂力学的 I 型裂纹), 仍可能在接触面处产生环形裂隙。这是一种使颗粒高度填充复合材料产生初始缺陷的重要机制。

如果对上述模型材料施加剪切力, 则, ①密堆颗粒间的咬合作用会加强材料整体抵抗剪切的能力; ②接触面及其邻域的材料发生剪切变形甚至撕裂破坏(断裂力学的 II、III 型裂纹)。

以上的描述, 只是基于 Hertz 接触理论进行的定性讨论, 详尽的图象需要借助计算细观力学获

取, 并需实验验证。

### 3 两种模型用于研究颗粒含量的变化对内应力的影响

从细观力学的角度, 采用胞元模型<sup>[1]</sup>和接触模型, 可以研究颗粒含量(wt%)大范围变化时对体系的内应力的影响。

如[1]所述, 假定颗粒含量足够低( $V_f \ll 1 - \phi_0$ ), 可采用胞元模型, 定性研究颗粒填充复合材料内应力的成因。

当颗粒含量高到  $V_f \gg 1 - \phi_0$ , 必有颗粒直接接触, 接触效应显著。这时可采用接触模型来定性研究颗粒接触对颗粒高度填充复合材料内应力影响。

而当颗粒含量  $V_f$  在某个过渡范围变化时, 可以用两种模型定性研究颗粒接触对复合材料内应力的影响。由前文可知, 颗粒填充复合材料中, 接触应力可能比胞元模型得出的内应力大得多。因此, 颗粒含量越大, 由于颗粒直接接触而产生的接触应力越大, 即复合材料中内应力越大。

新保正树、吴金森等<sup>[6, 7]</sup>在用  $\text{SiO}_2$  填充双酚 A 型环氧树脂的研究中指出, 在填料低的情况下, 当填料浓度增大, 体系的内应力降低。如果填料含量过大, 则适得其反, 体系的内应力反而急剧增大, 如图 3 和表 1。

表 1  $\text{SiO}_2$  填充环氧树脂的一些性质

填料质量分数/%	内应力/(kg/cm <sup>2</sup> )	玻璃态收缩/%	$G/(10^4 \text{kg/cm}^2)$	$E/(10^4 \text{kg/cm}^2)$	$E \cdot \epsilon / (\text{kg/cm}^2)$
0	82.1	4.2	1.01	2.69	376.7
	76.5	3.8	1.12	2.98	377.5
	75.0	3.5	1.19	3.17	369.3
	70.9	3.1	1.30	3.46	351.3
	68.2	2.9	1.40	3.72	359.6
	78.3	2.8	1.56	4.15	378.3
	83.1	2.6	1.69	4.58	390.0
	96.3	2.5	1.89	5.03	419.2
	101.1	2.5	2.01	5.35	445.9

图表反映填料质量分数从 0%~38.3%(颗粒高度填充)的变化范围里, 颗粒填充复合体系的内应力的变化。由图看到, 当复合体系的颗粒含量从 0% 逐渐增大时, 体系的内应力逐渐降低, 到约 26% 时, 体系的内应力达到最小, 当复合体系的颗粒含量逐渐增大时, 体系的内应力逐渐增大, 可见, 体系内应力随着颗粒含量的变化具有明显的极值。所以,

对用低或高颗粒含量填充的复合材料来说, 在承受同样外载时, 其内应力有很大差异, 从而导致损伤破坏的部位及形式的根本不同。

新保正树等从材料模量和玻璃态收缩解释上述现象。新保正树认为: 填充体系的内应力不但与玻璃态收缩有关, 而且还与体系弹性模量的变化有关。体系模量随填料含量而增大, 在填料含量较高

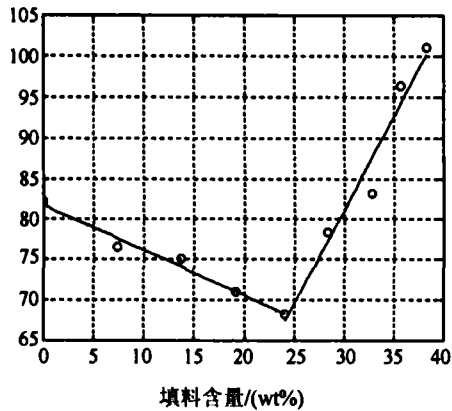


图3 填充环氧树脂的内应力与填料含量的关系

的区域内,对模量的影响更为明显。所以填料体系的内应力应由玻璃态收缩和弹性模量两个变量决定的,在低填料含量区域玻璃态收缩随填料含量的变化大,而模量变化小,这时体系的内应力主要决定于收缩,内应力随填料含量增大而降低。在高填料含量区域收缩的变化不大,而弹性模量却急剧增大。这时只要有一点收缩就会引起非常大的内应力。因此,在高填料含量时,内应力主要受弹性模量的支配,而明显增大。另外,新保正树在填充环氧树脂的一系列电镜照片上还看到,对应转折点填料浓度(约24%)时,填料粒子彼此接触。他认为,体系内应力的增大与填料的这一特征变化有关。可见,新保正树等也认识到填料粒子彼此接触造成内应力的增大的现象。

我们估计,这种填料含量现象,用胞元模型和接触模型可能作出更为合理的解释。新保正树指出的材料模量和玻璃态收缩,其实是颗粒填充复合材料的个别性质特征,而胞元模型和接触模型能更深

刻地揭示颗粒填充复合材料的本质。

本文未及就上述估计开展工作,但可以预计,观察填料含量大幅度变化时材料应力的变化,是检验胞元模型和接触模型的一个实验途径。

## 4 结论

(1) 基于复合材料细观力学,针对颗粒高度填充复合材料的特点,本文首次提出了接触模型,定性分析表明:接触应力集中于两颗粒接触面,颗粒形状失配是热压成型的复合材料产生内应力的主要成因。改善颗粒形状失配以减少接触应力的集中,能够达到降低这类复合材料内应力的目的。

(2) 初步认为,颗粒高度填充复合材料细观应力的最大起伏,可能是取决于颗粒的接触。

(3) 根据接触模型估计,颗粒间的接触面在界面间粘结剂挤出时会形成初始微裂纹;卸载降温时,残留在接触面的粘结剂薄膜拉裂,接触圆半径缩小,粘结相也体积收缩,则在接触圆周围会产生初始环形缝隙。这些初始缺陷是内外力作用下材料发生损伤破坏的重要条件。

(4) 假定颗粒含量足够低( $V_f \ll 1 - \phi_0$ ),可采用胞元模型,定性研究颗粒填充复合材料内应力的成因。当颗粒含量高到 $V_f \gg 1 - \phi_0$ ,必有颗粒直接接触,接触效应显著。这时可采用接触模型来定性研究颗粒接触对颗粒高度填充复合材料内应力影响。而当颗粒含量 $V_f$ 在某个过渡范围变化时,估计可以用两种模型定性研究颗粒接触对复合材料内应力的影响。

## 参考文献

- [1] 潘颖. PBX 复合材料内应力和损伤的初步研究. 北京:北京理工大学机电工程学院, 2000.
- [2] 潘颖. 刚性粒子填充高聚物细观损伤的显微观察. 北京理工大学学报, 2000, 20(1): 125-128.
- [3] M. Shimbo, M. Ochi and Y. Shigeta. J. Appl. Polym. Sci., 1981, 20 (26): 2265-2268.
- [4] 徐庆兰. 高聚物粘结炸药包覆过程及粘结机理的初步探讨. 含能材料, 1993, 1(2): 15-18.
- [5] Johnson, K.L. .Contact Mechanics. Cambridge University Press, 1985. 徐秉业等译.接触力学. 北京:高等教育出版社, 1992.
- [6] 新保, 越智, 曾, 山本. 日本协会志, 1981, 17: 507.
- [7] 吴金森. 环氧树脂固化过程中的收缩和内应力. 北京航空学院科学研究报告, 1986, 8.

作者简介: 潘颖,女,1959 年出生,博士,高工,主要研究方向为树脂基复合材料方面的研究。E-mail: topanying@gmail.com

# Mesosopic Mechanics Model of Internal Stress in Particle Reinforced Polymer Matrix Composite

Pan Ying<sup>1</sup>, Ding Yansheng<sup>2</sup>, Cai Ruijiao<sup>3</sup>

(1 Beijing Institute of Aeronautical Materials, Beijing 100095;

2 Institute of Mechanics, CAS, Beijing 100080;

3 Beijing Institute of Technology, Beijing 100081)

**Abstract** Based on the micromechanics of composite, a contact model is proposed for the first time in the paper. The contact model and the cellular element model enable to study the formation mechanism for internal stress of the particle reinforced polymer matrix composite under pressure moulding, namely, the unmatched modul, unmatched heat-expansion coefficient and unmatched particulate-shape in the particles and matrix material will initiate internal stress. Stress analysis shows that there are the contact stress concentration on the interface of particles. It is estimated that the limit value of the microstress in the composite may depends on the contact stress of particles.

**Key words** Particle reinforced composite Micromechanics Internal stress Contact model