

doi:10.3969/j.issn.1001-3539.2020.09.022

湿热—高温循环老化对环氧乙烯基酯树脂 / 玻璃纤维复合材料性能影响

王国建^{1,2}, 孙耀宁¹, 姜宏^{1,2}, 李过¹, 代礼葵¹

(1. 新疆大学机械工程学院, 乌鲁木齐 830047; 2. 新疆大学图书馆, 乌鲁木齐 830046)

摘要: 对玻璃纤维增强环氧乙烯基酯树脂基复合材料进行湿热—高温循环加速老化试验, 分析了复合材料在不同循环老化周期次数下的质量变化、吸湿率变化、表面元素含量、红外光谱、表面宏微观和断口形貌、树脂初始分解温度及弯曲强度。结果表明, 在湿热老化过程中, 复合材料的质量损失率和吸湿率随循环老化周期次数的增加逐渐增大; 在水分子的扩散、水解反应和热氧老化共同作用下, 复合材料试样表面产生大量裂纹、树脂发生老化降解、纤维与树脂基体界面出现脱粘, 同时循环老化造成树脂分子链断裂, 树脂交联密度下降, 导致树脂初始分解温度下降; 循环老化 6 个周期后, 复合材料的弯曲强度为 449.17 MPa, 弯曲强度保留率为 76.63%。

关键词: 复合材料; 湿热老化; 高温老化; 吸水率; 热稳定性; 弯曲性能

中图分类号: TB332 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3539(2020)09-0121-06

Influences of Cyclic Hygrothermal-Thermal Aging on Properties of Epoxy Vinyl Ester Resin / Glass Fiber Composites

Wang Guojian^{1,2}, Sun Yaoning¹, Jiang Hong^{1,2}, Li Guo¹, Dai Likui¹

(1. School of Mechanical Engineering, Xinjiang University, Urumqi 830047, China; 2. The Library of Xinjiang University, Urumqi 830046, China)

Abstract : The glass fiber reinforced epoxy vinyl ester resin composite was subjected to a damp hygrothermal-thermal cycle accelerated aging test, and the quality change, moisture absorption rate change, surface element content, infrared spectrum, surface macro-micro and fracture morphology, initial decomposition temperature and bending strength of composites under different cyclic aging cycle times were analyzed. The results show that during the humid heat aging process, the mass loss rate and moisture absorption rate of the composite gradually increases with the cyclic aging times increases. Under the combined action of the diffusion of water molecules, hydrolysis reaction and thermal and oxygen aging, a large number of cracks are generated on the surface of the composites, the resin ages and degrades, and the interface between the fiber and the resin matrix debonds, and cyclic aging causes the breakage of the resin molecular chain and the decrease in the resin crosslink density, the initial decomposition temperature of the resin decreases. After 6 cycle of cyclic aging cycle, the flexural strength of the composite is 449.17 MPa and the retention rate of flexural strength is 76.63%

Keywords : composite ; hygrothermal aging ; thermal aging ; water absorption ; heat stability ; flexural property

玻璃纤维增强树脂基复合材料具有轻质、高强、耐腐蚀、减振性好以及工艺可设计性强等优点, 已被广泛应用于风力发电行业^[1-3]。玻璃纤维增强树脂基复合材料在实际使用工况下, 不仅要考虑力学性能要求, 还要考虑环境因素, 如湿度、温度^[4-5]、氧、紫外辐射和化学介质对复合材料力学性能的影响, 这些因素会通过不同的交互损伤机制作用于复合材料, 导致其树脂基体老化降解、纤维与基体界面脱粘、耐热性能降低以及力学性能下降^[6-7]。

为探究上述环境老化因素对复合材料的影响, 国内外众多学者对其进行了大量研究。王蒙等^[8]探究了高温环境对溴化环氧树脂 / Sb₂O₃ 协效阻燃

基金项目: 国家自然科学基金项目 (51465055)

通讯作者: 孙耀宁, 博士, 教授, 博士生导师, 主要从事表面改性及复合材料研究 E-mail : xj_syn@126.com

收稿日期: 2020-07-06

引用格式: 王国建, 孙耀宁, 姜宏, 等. 湿热—高温循环老化对环氧乙烯基酯树脂 / 玻璃纤维复合材料性能影响 [J]. 工程塑料应用, 2020, 48(9) : 121-126, 132.

Wang Guojian, Sun Yaoning, Jiang Hong, et al. Influences of cyclic hygrothermal-thermal aging on properties of epoxy vinyl ester resin / glass fiber composites[J]. Engineering Plastics Application, 2020, 48(9) : 121-126, 132.

短玻璃纤维增强尼龙 10T 复合材料热氧老化行为及热降解动力学的影响。结果表明,复合材料结构破坏严重,热降解行为变化显著。韩耀璋等^[9]采用正交试验研究了温度、偶联剂含量和热流老化时间等因素对玻璃纤维增强环氧树脂复合材料弯曲和剪切性能的影响。结果表明,随着温度的升高弯曲强度总体下降了 11.8%。高坤等^[10]以环氧树脂/玻璃纤维复合材料为研究对象,对其进行湿热循环老化试验,研究了复合材料的力学性能、介电性能的变化及湿热老化机制。结果表明,随老化时间延长,复合材料的力学性能和介电性能下降。王国建等^[11]研究了高温老化对玻璃纤维增强环氧乙酯树脂基复合材料性能的影响。结果表明,复合材料的拉伸和弯曲性能老化初期有所上升,而后期逐渐下降,老化 28 d 时,拉伸和弯曲性能分别下降了 6.14% 和 9.23%。D. E. Mouzakis 等^[12]采用准静态力学和动态力学试验研究了温度、湿度、紫外辐射及其交替循环作用对复合材料性能的影响,结果表明,老化后复合材料的刚度增加,但强度略有下降。

目前,在玻璃纤维增强树脂基复合材料的老化因素研究中,大多只考虑单一因素作用,而实际使用环境是多种老化因素的综合作用。已有研究表明^[9],各种环境的综合作用,并非某种单一因素的简单叠加。针对风机叶片在湿热或者高温环境下老化性能及机理研究文献较多,但这与风机叶片实际使用工况下的复杂环境不同,笔者通过模拟风机叶片的使用工况,对玻璃纤维增强环氧乙酯树脂复合材料进行湿热-高温循环加速老化试验,研究了湿热-高温交替作用对复合材料质量、化学结构、化学元素含量、初始分解温度、宏微观形貌和力学性能的影响。

1 实验部分

1.1 主要原材料

玻璃纤维预浸带:预浸带由 E 型玻璃纤维 2D 编织而成,南京玻璃钢设计院;

环氧乙酯树脂:DM510C-350,亚什兰特种化学品有限公司;

过氧化甲乙酮:MEKP-925,亚什兰特种化学品有限公司;

环烷酸钴溶液:环烷酸钴质量分数为 6%,亚什兰特种化学品有限公司;

二甲苯基苯胺:纯度为 100%,重庆赛普那斯科技有限公司。

1.2 主要仪器与设备

电子万能试验机:MT5205 型,上海捷沪仪表有限公司;

电子天平:FA2004 型,上海精密仪器仪表有限公司;

扫描电子显微镜(SEM):SU-8010 型,日本日立公司;

傅立叶变换红外光谱(FTIR)仪:Nicolet 380 型,美国热电尼高力仪器公司;

高温老化试验箱:XMA-600 型,余姚市亚泰仪表有限公司;

恒温水浴箱:LX-HW-80L 型,东莞市力雄仪器有限公司;

X 射线光电子能谱(XPS)仪:ESCALAB 250Xi 型,美国赛默飞世尔科技公司;

热重(TG)分析仪:STA7300 型,北京赛思蒙仪器有限公司。

1.3 试样制备

采用真空袋压成型工艺,玻璃纤维体积分数为 60%。复合材料制备工艺步骤为:(1)检查模具的密封性;(2)依次铺放玻璃纤维预浸带、脱模纸、真空袋膜,通入树脂导流管,密封抽真空;(3)按照促进剂环烷酸钴溶液与二甲苯基苯胺的质量比为 40:1 配制溶液,确保搅拌均匀,静置 20 min;称取需要的环氧乙酯树脂,然后以质量分数 2% 的比例添加上述配制的溶液并搅拌均匀,再加入质量分数为 2.5% 的固化剂过氧化甲乙酮,搅拌 5 min,然后静置 20 min;(4)注树脂溶液时,使负压压力达到 -0.08 MPa 并保持稳定,常温固化 48 h;(5)后固化阶段,60℃固化 12 h。采用铺层参数为 $[(0,90)/(\pm 45)]_3$,试样尺寸 250 mm×15 mm×5 mm。

1.4 性能测试与表征

湿热-高温循环老化测试:先将复合材料试样放入 70℃高温老化试验箱内干燥至质量恒定,并将其作为基准质量。然后采用如图 1 所示的湿热-高温交替作用方法,把试样放入 60℃恒温水浴箱内,老化 3.5 d 后,把试样从恒温水浴箱中取出并测试其质量;再将试样放入温度为 130℃的高温老化试验箱中进行高温老化试验,老化 3.5 d 后,将试样取出测试其质量。每次循环老化的周期为 7 d,共进行 6 次循环。同时每次取出都对其质量进行测试,且每个循环老化周期后都采用相应的检测手段进行分析。

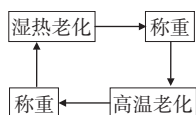


图1 湿热-高温循环老化示意图

吸湿率按式(1)计算:

$$M_t = \frac{W_1 - W}{W} \times 100\% \quad (1)$$

式中: M_t —— t 时刻吸湿率, %;

W_1 ——吸湿 t 时间的质量, g;

W ——基准质量, g。

质量损失率按式(2)计算:

$$R_t = \frac{W_2 - W}{W} \times 100\% \quad (2)$$

式中: R_t —— t 时刻质量损失率, %;

W_2 ——老化 t 时间后的质量, g。

弯曲强度按照 GB/T 1449—2005 测试, 弯曲速率为 2 mm/min。

XPS 测试: X 射线源为单色器 Al $K\alpha$ (光子能量 1486.6 eV)。

FTIR 测试: 扫描范围为 500~4 000 cm^{-1} , 采用 KBr 压片法, 将相应的复合材料磨成粉与 KBr 按 1:100 质量比混匀, 压片后测试。

SEM 分析: 采用 SEM 观察老化前后复合材料的表面及弯曲断面形貌, 为增加试样测试导电性, 需对测试试样表面和断面进行喷金处理。

TG 分析: N_2 气氛, 温度范围 50~650 $^{\circ}\text{C}$, 升温速率 10 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 。

2 结果与讨论

2.1 质量变化分析

经过不同湿热-高温循环老化周期次数后, 试样的吸湿率和质量损失率分别如图 2 和图 3 所示。

由图 2 可知, 老化初期为快速吸湿阶段。这是由于试样自身的缺陷和树脂吸水导致的; 后期吸湿逐渐趋于缓慢, 但总体呈上升趋势。试样在第 2 个循环老化周期时的吸湿率迅速上升。这是由于在湿热和高温的交替作用下材料内部产生裂纹, 水分子聚集使得试样吸湿率进一步增大。随着循环老化周期次数的增加, 试样的吸湿率变慢。这是由于高温老化的后固化作用使得试样湿热老化过程中产生的吸湿膨胀应力减少以及消除了材料自身的残余应力导致的^[14]。循环老化 6 个周期后, 试样的吸湿率为 1.91%。

由图 3 可知, 在循环老化过程中, 初期试样的质量损失速率快速上升, 后期逐渐趋于平稳, 循环老化

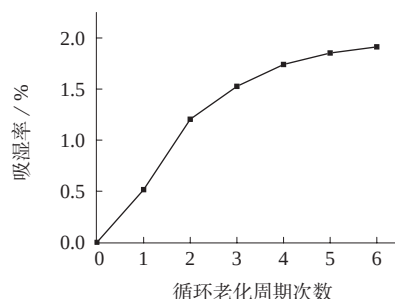


图2 不同循环老化周期次数后试样的吸湿率

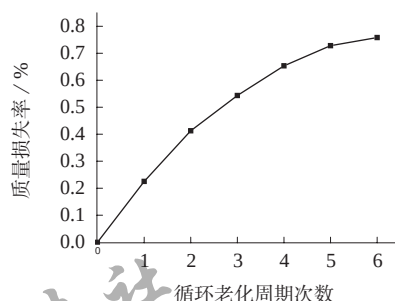
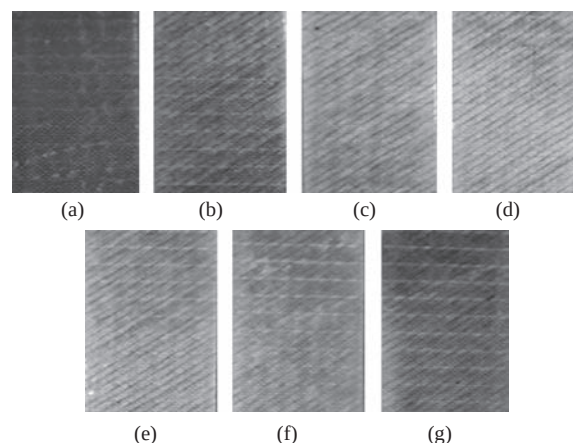


图3 不同循环老化周期次数后试样的质量损失率

6 个周期后, 试样的质量损失率为 0.75%。这主要是由于湿热老化后, 试样吸收的大量水分在高温老化过程中快速蒸发, 使得试样老化初期质量损失较大。随循环老化周期次数的增加, 试样在湿热和高温环境的交替老化下发生热氧老化, 导致树脂基体降解产生的低分子物质的挥发以及水分子对试样的水解作用, 从而试样的质量损失率不断增大。

2.2 表面形貌分析

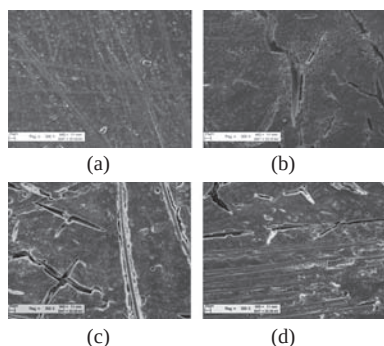
经过不同湿热-高温循环老化周期次数后, 试样的宏观形貌照片如图 4 所示, 微观形貌的 SEM 照片如图 5 所示。



循环老化周期次数: a—0; b—1; c—2; d—3; e—4; f—5; g—6

图4 不同循环老化周期次数后试样表面的宏观形貌

由实验和图 4 可知, 经过不同循环老化周期次数后, 试样表面颜色逐渐出现变黄和发白现象。随着循环老化周期次数的增加, 试样发黄和发白现象



循环老化周期次数: a—0; b—2; c—4; d—6

图5 不同循环老化周期次数后试样表面微观形貌的 SEM 照片

逐渐加剧,同时试样表面出现龟裂。不同循环老化周期次数下试样宏观形貌变化主要是树脂与空气中的氧气发生热氧反应产生新的发色基团,使其颜色变黄;造成试样发白的原因是水分子在树脂中扩散及水分子在孔隙、微裂纹和界面脱粘等缺陷中的聚集,以及纤维/树脂间界面破坏导致的^[15]。

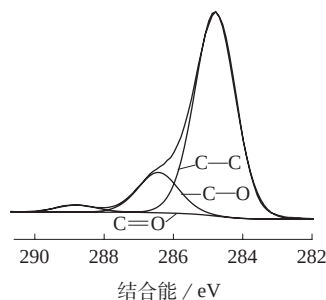
由图 5a 可见,未老化试样表面相对平滑,且纤维完全被树脂覆盖,说明树脂与纤维结合良好。循环老化 2 个周期后,如图 5b 所示,试样表面出现大量裂纹,说明试样表面树脂基体开始发生降解;循环老化 4 个周期后,如图 5c 所示,试样表面裂纹加剧,树脂脱落和纤维暴露,且纤维与树脂基体间出现空隙;循环老化 6 个周期后,如图 5d 所示,纤维与树脂的结合状况变差,纤维与树脂脱粘现象严重、纤维暴露以及基体表面的裂纹现象加剧并出现翘曲变形。主要原因是:(1) 在湿热老化过程中,由于纤维与树脂基体的吸湿膨胀系数不同,使得其界面处产生剪应力,造成其界面出现裂纹^[16],随循环老化周期次数的增加,导致裂纹的进一步扩展;(2) 在高温老化过程中,树脂基体发生收缩,同时纤维与树脂的热膨胀系数不同,使得试样内部产生应力,纤维与树脂间产生裂纹,同时水分子的蒸发加速了界面破坏,从而在试样表面出现大量裂纹;(3) 随循环老化周期次数的增加,树脂基体发生水解反应和热氧老化降解,两者相互促进导致树脂基体降解、脱落,以及裂纹扩展并出现翘曲变形。

2.3 XPS 分析

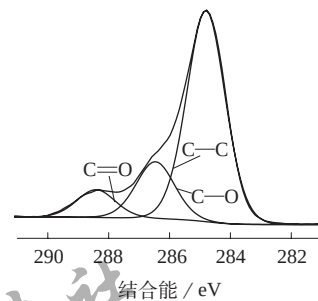
经过不同湿热-高温循环老化周期次数后,试样表面的元素含量列于表 1, C_{1s} 谱图如图 6 所示。

表 1 不同循环老化周期次数后试样表面的 XPS 测试结果

循环老化 周期次数	原子含量 / %				C/O
	C	O	N	Si	
0	79.38	17.15	1.72	1.75	4.63
6	65.68	27.19	2.42	3.71	2.41



(a)



(b)

循环老化周期次数: a—0; b—6

图6 不同循环老化周期次数后试样表面的 C_{1s} 谱图

由表 1 可知,未老化试样表面的 C, O, N, Si 元素含量分别为 79.38%, 17.15%, 1.72%, 1.75%, 循环老化 6 个周期后,试样表面的 C 元素含量下降为 65.68%,而 O, N, Si 元素含量分别增加到 27.19%, 2.42%, 3.71%, 同时 C/O 由 4.63% 下降到 2.41%。这是由于环氧乙烯基酯树脂中主要含有 C, O, N 等元素,而玻璃纤维中主要含有 Si, O 元素。从试样表面形貌可知,在不同循环老化周期次数下,试样发生了热氧老化降解,造成试样表面的元素含量发生变化。

由图 6 可知,未老化和循环老化 6 个周期后,试样表面的 C_{1s} 谱图均由 3 个峰组成,分别位于 284.78, 286.78, 288.78 eV, 并分别对应 C—C, C—O 和 C=O; 循环老化 6 个周期后的试样表面的 C=O 基团和 C—O 基团的峰值均升高,而 C—C 基团的峰值下降,说明在湿热-高温循环老化的过程中树脂基体的水解、氧化反应导致树脂大分子链断裂,从而使得试样表面出现树脂脱粘、纤维暴露及裂纹产生的现象。

2.4 FTIR 分析

为进一步分析湿热-高温循环老化对试样表面化学结构影响,用 FTIR 对不同循环老化周期次数的试样进行分析,结果如图 7 所示。

由图 7 可知,循环老化 6 个周期后,试样在 3471 cm^{-1} 处的羟基 O—H 的吸收峰强度增大。说

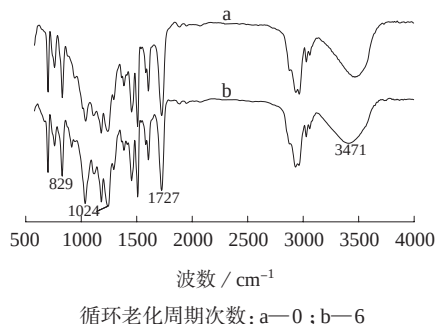


图7 不同循环老化周期次数的试样的 FTIR 谱图

明试样中的水分子以结合键的形式存在于基体中; 829 cm^{-1} 处的 $\text{C}=\text{C}$ 双键、1042 cm^{-1} 处的 $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 伸缩振动峰、1727 cm^{-1} 处的羧基 $\text{C}=\text{O}$ 吸收峰强度都减弱。这是由于循环老化过程中湿热与高温老化的交替作用,导致树脂基体中 $\text{C}=\text{C}$ 双键和其它化学键发生了断裂。结合试样表面形貌和 XPS 分析,说明树脂大分子结构发生了改变,生成了其它物质,进一步说明其发生了水解和热氧化反应。

2.5 耐热性能分析

经过不同湿热-高温循环老化周期次数后,试样的 TG 曲线如图 8 所示。

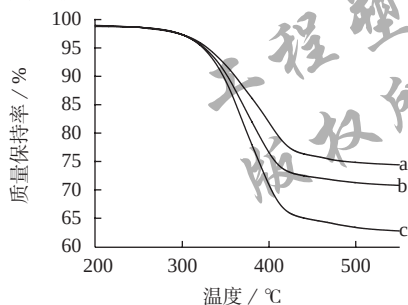


图8 不同循环老化周期次数后试样的 TG 曲线

由图 8 可知,试样的初始分解温度在 310 $^{\circ}\text{C}$ 附近,随着循环老化周期次数的增加,试样的初始分解温度出现不同程度的下降,循环老化 3 个周期后,试样的初始分解温度下降明显,下降了 6.2 $^{\circ}\text{C}$ 左右。这是由于湿热老化过程中树脂基体发生吸湿溶胀,树脂大分子链间距离变大,运动能力增加,破坏化学键间的范德华力,从而引起其初始分解温度降低。随着循环老化周期次数的增加,其下降程度减小。这是由于在交替老化过程中高温使试样发生后固化,导致树脂大分子之间相互作用力增大,使得交联密度增大,同时对试样在湿热老化过程的吸湿作用产生的溶胀和塑化的修复使得树脂的初始分解温度有所上升。循环老化 6 个周期后,由于树脂基体的水解和热氧化降解导致树脂化学键断裂,最终使树

脂的初始分解温度下降了 8.5 $^{\circ}\text{C}$ 左右。

2.6 力学性能分析

不同循环老化周期次数后,试样的弯曲强度列于表 2,弯曲强度保留率如图 9 所示。

项目	循环老化周期次数						
	0	1	2	3	4	5	6
弯曲强度	578.61	528.62	500.03	479.44	463.64	455.31	449.17

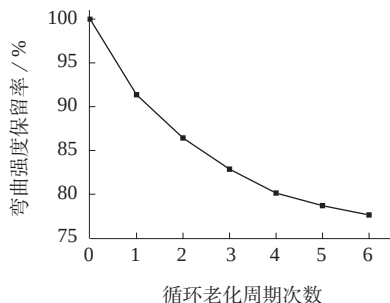


图9 不同循环老化周期次数后试样的弯曲强度保留率

由表 2 和图 9 可知,随着循环老化周期次数的增加,试样的弯曲强度逐渐降低。这是由于在湿热老化过程中,水分子在基体中的扩散作用,使基体发生溶胀、增塑,树脂吸湿引起的湿膨胀系数不同所产生的湿应力不同,同时树脂基体中酯基发生水解反应,导致其界面结合力降低,造成试样的弯曲强度下降。在高温老化过程中,试样温度升高使得因膨胀系数不同而产生的热应力损伤增大,同时促进材料内部水分子与树脂的水解反应以及高温作用下的热氧化老化,导致试样内部产生裂纹及基体老化降解,使得试样的弯曲强度下降。未老化时试样的弯曲强度为 578.61 MPa,循环老化 6 个周期后,试样的弯曲强度为 449.17 MPa,弯曲强度保留率为 76.63%。

2.7 断面形貌分析

经过不同湿热-高温循环老化周期次数后,试样断面的 SEM 照片如图 10 所示。

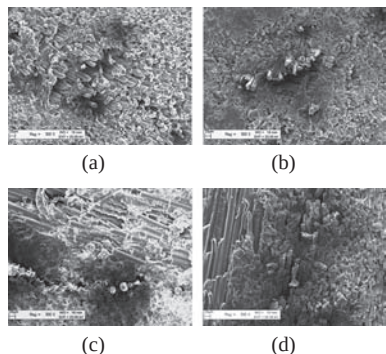


图10 不同循环老化周期次数后试样断面 SEM 照片

由图 10 可见,未老化试样断面的基体与树脂粘

结性较好;经湿热-高温循环老化2个周期后,出现部分纤维与树脂脱粘,且有裂纹产生;循环老化4个周期后,断面树脂脱粘严重,且有大量裂纹产生;循环老化6个周期后,树脂脱粘现象加剧,试样断面裂纹变大,且有部分纤维束的拔出。产生上述现象的主要原因是湿热老化过程中试样的吸湿膨胀系数不同,产生收缩应力,高温老化过程中的热膨胀系数不同,产生的热应力导致纤维与树脂界面产生裂纹;同时随着循环老化周期次数的增加,湿热和高温过程中树脂的水解和热氧老化降解导致树脂基体与纤维脱粘,从而引起了基体性能和界面性能的下降。

3 结论

(1) 在湿热-高温老化过程中,随着循环老化周期次数的增加,玻璃纤维增强环氧乙烯基酯树脂复合材料的吸湿率、质量损失率均逐渐增大,循环老化6个周期后,吸湿率、质量损失率分别为1.91%、0.75%。

(2) 在湿热-高温环境的交替作用下,试样表面出现龟裂和翘曲变形,且随着循环老化周期次数的增加,表面颜色发黄和泛白逐渐加剧;同时吸湿和脱湿过程导致树脂基体发生降解,纤维与树脂界面的脱粘、裂纹及纤维与纤维之间出现空隙,同时树脂基体发生水解和热氧化反应;循环老化过程中树脂分子链发生断裂,导致交联密度下降,使树脂的初始分解温度下降。

(3) 湿热-高温循环老化后,试样在水的扩散、树脂基体水解和热氧老化的共同作用下,树脂基体溶胀、增塑,化学结构和纤维/基体间结合力破坏以及湿应力和热应力损伤,导致复合材料的弯曲强度下降,循环老化6个周期后,试样的弯曲强度为449.17 MPa,弯曲强度保留率为76.63%。

参考文献

- [1] Feng Peng, Wang Jie, Wang Yi, et al. Effects of corrosive environments on properties of pultruded GFRP plates[J]. *Composites Part B: Engineering*, 2014, 67:427-433.
- [2] 沈军, 谢怀勤. 先进复合材料在航空航天领域的研发与应用[J]. *材料科学与工艺*, 2008, 16(5):737-740.
Sheng Jun, Xie Huaiqin. Development of research and application of the advanced composite materials in the aerospace engineering[J]. *Materials Science and Technology*, 2008, 16(5):737-740.
- [3] Oprisan G, Taranu N, Munteanu V, et al. Application of modern polymeric composite materials in industrial construction[J]. *Bulletin of the Polytechnic Institute of Jassy*, 2010, 66(70):121-130.
- [4] 高禹, 王钊, 卢少微, 等. 影响纤维增强树脂基复合材料层合板疲劳性能的主要因素[J]. *航空制造技术*, 2013, 435(15):91-95.
- [5] Gao Yu, Wang Zhao, Lu Shaohui, et al. Main influential factors of fatigue properties of fiber reinforced composites laminates[J]. *Aeronautical Manufacturing Technology*, 2013, 435(15):91-95.
- [6] Zheng Chuangxiang, Wang Liang, Rong Li, et al. Fatigue test of carbon epoxy composite high pressure hydrogen storage vessel under hydrogen environment[J]. *Journal of Zhejiang University Science A: Applied Physics & Engineering*, 2013, 14(6):393-400.
- [7] Banan M H, Shirokoff J, Molgaard J. Effects of two aqueous acidic solutions on polyester and bisphenol A epoxy vinyl ester resins[J]. *Materials Science & Engineering A*, 2011, 528(4):2137-2142.
- [8] Amaro A, Reis P, Neto M, et al. Effect of different acid solutions on glass/epoxy composites[J]. *Journal of Reinforced Plastics & Composites*, 2013, 32(14):1018-1029.
- [9] 王蒙, 宋海硕, 郭建兵. 阻燃型玻纤增强尼龙10T复合材料的热氧化行为及热降解动力学[J]. *材料导报*, 2018, 32(8):1344-1351, 1356.
Wang Meng, Song Haishuo, Guo Jianbing. Thermo-oxidative aging and thermal degradation kinetics of the flame retardant glass fiber reinforced nylon 10T composites[J]. *Materials Review*, 2018, 32(8):1344-1351, 1356.
- [10] 韩耀璋, 李进, 张佃平, 等. 原位在线监测多因素协同对玻璃纤维增强环氧树脂复合材料热老化性能的影响[J]. *复合材料学报*, 2020, 37(7):1531-1538.
Hang Yaozhang, Li Jin, Zhang Dianping, et al. Effects of multiple factors on thermal properties of glass fiber reinforced epoxy resin composites using in situ monitoring[J]. *Acta Materialiae Compositae Sinica*, 2020, 37(7):1531-1538.
- [11] 高坤, 史汉桥, 孙宝岗, 等. 湿热老化对玻璃纤维/环氧树脂复合材料性能的影响[J]. *复合材料学报*, 2016, 33(6):1147-1152.
Gao Kun, Shi Hanqiao, Sun Baogang, et al. Effects of hydrothermal aging on properties of glass fiber/epoxy composites[J]. *Acta Materialiae Compositae Sinica*, 2016, 33(6):1147-1152.
- [12] 王国建, 孙耀宁, 蒋万乐, 等. 玻璃纤维增强环氧乙烯基酯树脂基复合材料的热老化性能[J]. *工程塑料应用*, 2017, 45(10):87-91, 107.
Wang Guojian, Sun Yaoning, Jiang Wanle, et al. Thermal aging properties of gf reinforced epoxy vinyl ester resin matrix composites[J]. *Engineering Plastics Application*, 2017, 45(10):87-91, 107.
- [13] Mouzakis D E, Zoga H, Galiotis C. Accelerated environmental ageing study of polyester/glass fiber reinforced composites[J]. *Composites Engineering*, 2008, 39(3):467-475.
- [14] 张代军, 刘刚, 包建文, 等. T700碳纤维增强环氧树脂基复合材料自然老化性能与机制[J]. *复合材料学报*, 2016, 33(7):1390-1399.
- [15] Zhang Daijun, Liu Gang, Bao Jianwen, et al. Environment aging

- [2] 许建军,杨开雄,李志坚,等. 导热绝缘环氧树脂/ZnO复合材料的制备及其性能研究[J]. 胶体与聚合物,2019,37(4):151-154.
Xu Jianjun, Yang Kaixiong, Li Zhijian, et al. Preparation and properties of thermal conductive insulating epoxy/ZnO composites[J]. Chinese Journal of Colloid & Polymer, 2019, 37(4):151-154.
- [3] 吴丽丽,王云飞,谢灵慧,等. 玻璃纤维增强聚合物复合材料筋与工程水泥基复合材料黏结性能[J]. 复合材料学报,2020,37(3):696-706.
Wu Lili, Wang Yunfei, Xie Linghui, et al. Bonding behavior between glass fiber reinforced polymer composite bars and engineered cementitious composite[J]. Acta Materialiae Compositae Sinica, 2020, 37(3):696-706.
- [4] 彭庆宇. 复合材料增强体的跨尺度设计及其界面增强机制研究[D]. 哈尔滨:哈尔滨工业大学,2014.
Peng Qingyu. Hierarchical design of composites reinforcement and study on its interfacial enhancement mechanism[D]. Harbin:Harbin Institute of Technology, 2014.
- [5] 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 Dongzhi. The molecular design of sizing agents and its effect on glass fiber and composite interfacial property[D]. Jinan:Shandong University, 2014.
- [6] 武卫莉,陈丰雨. 硅烷偶联剂对高密度聚乙烯/硅藻土的改性研究[J]. 中国塑料,2020,34(2):30-35.
Wu Weili, Chen Fengyu. Study on modification of diatomite with silane coupling agent and its application for high-density polyethylene composites[J]. China Plastics, 2020, 34(2):30-35.
- [7] Karnati S R, Oldham D, Fini E H, et al. Application of surface-modified silica nanoparticles with dual silane coupling agents in bitumen for performance enhancement[J]. Construction and Building Materials, 2020, 244:doi:10.1016/j.conbuildmat.2020.118324.
- [8] Ogasawara T, Nara A, Okabayashi H, et al. Time-resolved near-infrared and two-dimensional near-infrared correlation spectroscopic studies on polymerization of the silane coupling agent perfluorooctyltrimethoxysilane[J]. Colloid and Polymer Science, 2000, 278:946-953.
- [9] Wu Weili, Zuo Hongtao. Used tire rubber powder/plant cellulose composites treated with coupling agent[J]. Cellulose, 2016, 23:1939-1947.
- [10] Hafezi S M, Enayati A, Hosseini K D, et al. Use of amino silane coupling agent to improve physical and mechanical properties of UF-bonded wheat straw (*Triticum aestivum* L.) poplar wood particleboard[J]. Journal of Forestry Research, 2016, 27:427-431.
- [11] 钱逢麟,竺玉书. 涂料助剂——品种和性能手册[M]. 北京:化学工业出版社,1991:292.
Qian Fenglin, Zhu Yushu. Paint additives—variety and performance manual[M]. Beijing:Chemical Industry Press, 1991:292.
- [12] Kennedy J E, Higginbotham C L. Synthesis and characterisation of styrene butadiene styrene-g-N-isopropylacrylamide via UV polymerisation for potential use in biomedical applications[J]. Journal of Materials Science, 2010, 45:599-606.
- [13] Dong Li, Liu Xiangdong, Xiong Zhengrong, et al. Preparation and characterization of UV-absorbing PVDF membranes via pre-irradiation induced graft polymerization[J]. Chinese Journal of Polymer Science, 2019, 37:493-499.
- [14] Bryant S J, Nuttelman C R, Anseth K S. Cytocompatibility of UV and visible light photoinitiating systems on cultured NIH/3T3 fibroblasts in vitro[J]. Journal of Biomaterials Science Polymer, 2000, 11:439-457.
- [15] 张辉,董艳勇,强西怀. 聚乙烯蜡的氧化及阳离子乳化工艺[J]. 高分子材料科学与工程,2011,27(3):136-139.
Zhang Hui, Dong Yanyong, Qiang Xihuai. Oxidation and cationic emulsifying process of polyethylene wax[J]. Polymer Materials Science and Engineering, 2011, 27(3):136-139.
- =====
- (上接第126页)
- performance and mechanism of T700 carbon fiber reinforced epoxy resin matrix composites[J]. Acta Materialiae Compositae Sinica, 2016, 33(7):1390-1399.
- [14] Dave R S, Loos A C. Processing of composites [M]. Munich:Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, 2000:270-278.
- [15] 赵鹏. 纤维增强树脂基复合材料湿热老化性能研究[D]. 南京:南京航空航天大学,2009:21-23.
Zhao Peng. Research on the hygrothermal aging performance of frp composites[D]. Nanjing:Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, 2009:21-23.
- [16] 管清宇,李卫平. 湿热环境对CYCOM 7701/7781玻纤环氧复合材料典型力学性能的影响[J]. 复合材料学报,2018, 35(12):3288-3297.
Guan Qingyu, Li Weiping. Effect of hydro-thermal condition on typical mechanical property of CYCOM 7701/7781 fiberglass epoxy composite[J]. Acta Materialiae Compositae Sinica, 2018, 35(12):3288-3297.