



Investigation of Synergistic Influence of Reduced Graphene Oxide and Multi-walled Carbon Nanotubes on Flexural Properties and Interlaminar Shear Strength of Carbon Fiber/Epoxy Composites

Mohammad Amin Bahrami^{1*}

¹Faculty Member, Department of Mechanical Engineering, Technical and Vocational University (TVU), Tehran, Iran.

ARTICLE INFO

ABSTRACT

Article Type:

Original Research

Received: 10.16.2021

Revised: 11.24.2021

Accepted: 01.03.2021

Keyword:

Synergistic Influence
Carbon Fiber Composite
Multi-walled Carbon Nanotubes
Reduced Graphene Oxide
Flexural Properties
Interlaminar Shear Strength

*Corresponding Author:

Mohammad Amin Bahrami
Email: maba63@gmail.com

In this paper, the synergistic influence of reduced graphene oxide and multi-walled carbon nanotubes on flexural properties and interlaminar shear strength of unidirectional carbon fiber and epoxy composites was investigated experimentally. To undertake the study, four specimens of carbon fiber/epoxy composite, carbon fiber/epoxy/multi-walled carbon nanotube composite, carbon fiber/epoxy/reduced graphene oxide composite, and carbon fiber/epoxy/multi-walled carbon nanotube/reduced graphene oxide composite were made manually. Three-point bending test was used to evaluate the flexural properties and interlaminar shear strength. The test results showed that carbon fiber/epoxy/multi-walled carbon nanotube/reduced graphene oxide composite had better properties than the other composites and this was due to the synergistic effect of the two nanoparticles. Flexural properties including flexural stress, flexural strain and flexural modulus increased by 53.12%, 31.76% and 8.6%, respectively, and interlaminar shear strength increased by 60.41% compared to the specimen without nanoparticles. In addition, to observe the distribution of nanoparticles and the type of fracture performed, fracture surface analyses of all specimens were carried out.



EXTENDED ABSTRACT

Introduction

Today, carbon fiber reinforced polymer (CFRP) composites are used in many advanced technologies such as aerospace, military, marine and automotive due to their high strength and hardness, and low density. Damping and energy loss are caused by the viscoelastic properties of the matrix material and the interlaminar shear strength (ILSS) between the fibers and the matrix. Improving the mechanical properties of the matrix can improve the energy absorption capacity because ILSS controls the delamination of the composite. The structural integrity of composites can be improved by suitable bonding between matrix and fibers and it ensures efficient stress transfer from the matrix to the reinforcing fibers. The combination of graphene and carbon nanotubes can increase the mechanical properties of carbon fiber reinforced epoxy composites. Uneven distribution of CNTs on the surface of carbon fibers and CNT accumulation due to high aspect ratio and strong van der Waals forces is one of the main problems of CNT combination in carbon fiber/epoxy composite. One of the proposed ways to solve this problem is the use of nanoparticles such as graphene nanosheets, clay nanoparticles, and boron nitride. CNTs form a three-dimensional structure with graphene that prevents agglomeration. Therefore, it reinforces the surface between fibers and matrix.

Inspired by the research and background mentioned above, in this research, the synergistic effect of reduced graphene oxide (RGO) and multi-walled carbon nanotubes on the flexural properties and interlayer shear strength of carbon fiber/epoxy composites were investigated. For this purpose, the three-point bending test was used and its results reported. Direct homogenization technique used to combine nanoparticles with epoxy and hand lay-up method used to make composites. SEM electronic microscope also used to check the fracture surface of the samples.

Experimental procedure

RGO sheets (Platonic Nanotech Pvt. Ltd, India; purity>99 %) with length of 5-10 μm and thickness of 1-10 nm, and MWCNTs (Platonic Nanotech Pvt. Ltd, India; purity>97 %) with outer average diameter of 10–35 nm and length of 2–10 μm were used as fillers in the present study. A continuous UD carbon fiber in dry form (JSUD200, You Chang Carbon Co. Ltd.) was chosen with density of 200 g/m², tensile strength and modulus of 3.245 and 224 GPa, respectively. The epoxy matrix consisted of Diglycidyl ether of bisphenol-A based epoxy resin (CY-219) with an amine hardener (HY-5161), supplied by Hunstman Co. Ltd. First, MWCNTs, RGO and MWCNTs/RGO were dried using an oven and a certain percentage then mixed with epoxy resin. The dispersion was carried out by a stirrer for 30 min at 1000 rpm. Subsequently, the mixture was ultrasonicated for 20 min. After homogenization, hardener was added to the mixture and stirred for 5 min at 1000 rpm. Then, a part of the mixture was poured into the mould to fabricate test specimens.

For producing composite laminates, four plies of unidirectional carbon fiber were cut into a certain size and sequenced by [0/90/0/90] lay-up. Specimens were maintained for 24 h at room temperature for complete curing. The samples were prepared for bending tests as shown in Table 1 and five samples were cut for each test. The selected percentages for each of the nanoparticles were selected according to the previous study.

Table 1. Samples prepared for tests.

Sample code	Fiber	Matrix	RGO%	MWCNTs%
FCE	UD carbon fiber	epoxy	0	0
FCER	UD carbon fiber	epoxy	0.6	0
FCEMW	UD carbon fiber	epoxy	0	0.04
FCEMWR	UD carbon fiber	epoxy	0.6	0.04

Dimensions of 50 x 10 x 2 mm according to ASTM D2344 standard was used to determine the interlaminar shear strength of composite samples. The samples were subjected to three-point bending test at room temperature at a speed of 1 mm/min. The support span distance was 12 mm, the diameter of the loading pin and supporting pins were 6 mm and 3 mm, respectively. Equation (1) was used to determine the interlaminar shear strength:

$$ILSS = \frac{3P}{4bd} \quad (1)$$

Where P is the maximum applied force, D is the maximum deviation of the center and m is the slope of the elastic line at the beginning of displacement force curve.

For flexural properties, dimensions were 85 x 13 x 2 mm according to ASTM D7264, and speed was 3.8 mm/min. The support span distance was 68 mm, the diameter of the loading pin and supporting pins were 10 mm. Equations (2-4) were used to determine the flexural stress, flexural strain and flexural modulus, respectively:

$$\sigma_f = \frac{3PL}{2bd^2} \quad (2)$$

$$\varepsilon_f = \frac{6Dd}{L^2} \quad (3)$$

$$E_f = \frac{L^3m}{4bd^3} \quad (4)$$

Where L is the support span distance, b is the width and d is the thickness of the sample.

Scanning electron microscopy was utilized to analyze the fracture surfaces with high magnification. For this purpose, an AIS2300C scanning electron microscope (SEM) at 22kV accelerating voltage was used.

Results and discussion

Figure 1 indicates that the flexural curves of the samples changed significantly with the addition of nanomaterials. Therefore, the FCEMW and FCER samples were more optimal than the FCE sample in which nanoparticles were used. FCEMWR sample had the highest strength due to the synergistic effect of the two nanoparticles.

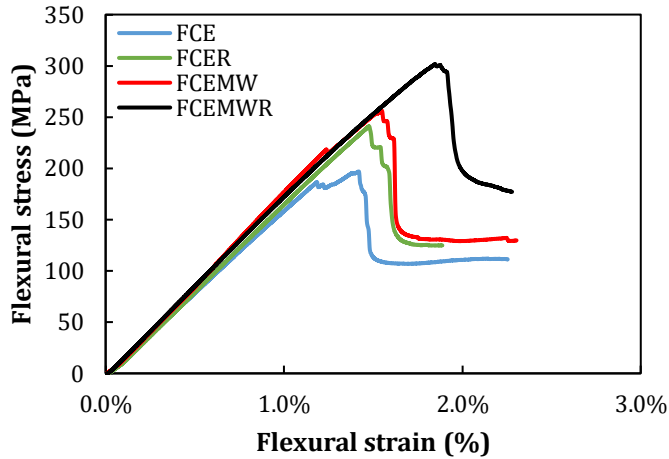


Figure 1. Flexural stress-strain curves of samples.

Values of flexural stress, flexural strain and flexural modulus are shown in Table 2.

Table 2. Samples prepared for tests.

Sample code	Flexural stress (MPa)	Flexural strain (%)	Flexural modulus (GPa)
FCE	16.04 (0%)	1.401 (0%)	196.91 (0%)
FCER	16.93 (+5.54%)	1.476 (+5.35%)	241.02 (+22.4%)
FCEMW	18.01 (+12.28%)	1.547 (+10.42%)	256.02 (+30.01%)
FCEMWR	17.42 (+8.6%)	1.846 (+31.76%)	301.52 (+53.12%)

Figure 2 presents the changes of interlaminar shear strength for the tested samples. The increase in interlaminar shear strength for FCER, FCEMW and FCEMWR samples compared to the control sample was 22.05%, 31.67% and 60.37%, respectively. The greatest improvement in shear strength was related to the FCEMWR sample, which was due to the presence of two nanoparticles and the synergistic effect of these two nanoparticles.

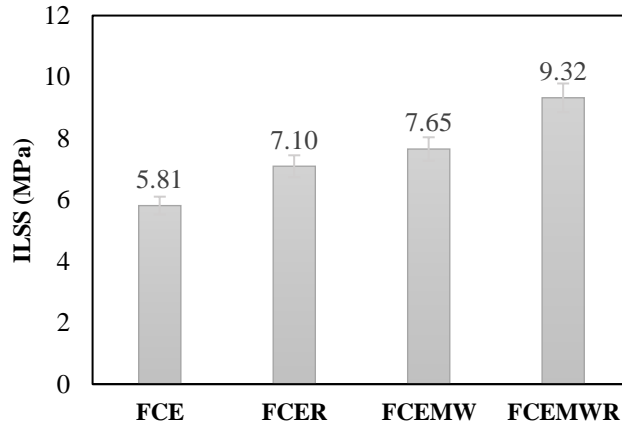


Figure 2. Interlaminar shear strength (ILSS) of samples.

Figure 3 shows the SEM images of the fracture surface of FCE, FCER, FCEMW and FCEMWR. The least outstretching of fibers corresponds to the FCEMWR sample (Figure 3-d). This indicates that the interfacial adhesion between fibers and epoxy was increased.

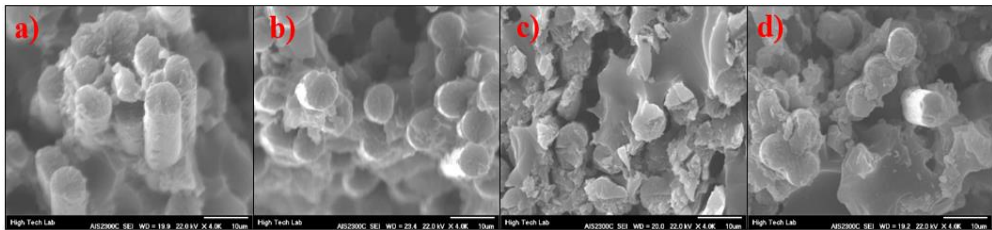


Figure 3. The SEM images of the fracture surface of a) FCE b) FCER c) FCEMW d) FCEMWR.

Conclusion

Flexural stress, flexural strain, flexural modulus and interlaminar shear strength of FCEMWR composite increased by approximately 53.12%, 31.76%, 8.6% and 60.41%, respectively, compared to the FCE composite.



بررسی تأثیر هم‌افزایی اکسیدگرافن کاهش‌یافته و نانولوله کربنی چندجداره بر خواص خمشی و استحکام برشی بین‌لایه‌ای کامپوزیت‌های الیاف کربن/اپوکسی

محمد امین بهرامی*¹

۱- عضو هیئت علمی، گروه مهندسی مکانیک، دانشگاه فنی و حرفه‌ای، استان تهران، ایران.

چکیده

اطلاعات مقاله

نوع مقاله: مقاله پژوهشی

دریافت مقاله: ۱۴۰۰/۰۷/۲۴

بازنگری مقاله: ۱۴۰۰/۰۹/۰۳

پذیرش مقاله: ۱۴۰۰/۱۰/۱۳

کلید واژگان:

تأثیر هم‌افزایی
کامپوزیت الیاف کربن
نانولوله کربنی چندجداره
اکسیدگرافن کاهش‌یافته
خواص خمشی
استحکام برشی بین‌لایه‌ای

در این مقاله تأثیر هم‌افزایی اکسیدگرافن کاهش‌یافته و نانولوله کربنی چندجداره بر خواص خمشی و استحکام برشی بین‌لایه‌ای کامپوزیت ساخته‌شده از الیاف کربن تک‌جهته و اپوکسی مورد بررسی تجربی قرار گرفته است. برای بررسی چهار نمونه شامل: کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی، کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی/نانولوله کربنی چندجداره، کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی/اکسیدگرافن کاهش‌یافته و کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی/نانولوله کربنی چندجداره/اکسیدگرافن کاهش‌یافته به روش لایه‌گذاری دستی ساخته شده است. برای بررسی خواص خمشی و استحکام برشی بین‌لایه‌ای از آزمون خمش سه نقطه استفاده شده است. نتایج آزمون نشان داد که نمونه کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی/نانولوله کربنی چندجداره/اکسیدگرافن کاهش‌یافته خواص خمشی و استحکام برشی بهتری دارد و این به دلیل تأثیر هم‌افزایی دو نانوذره است. خواص خمشی شامل تنش خمشی، کرنش خمشی و مدول خمشی به ترتیب ۵۳/۱۲، ۳۱/۷۶ و ۸/۶ درصد و استحکام برشی بین‌لایه‌ای ۶۰/۴۱ درصد نسبت به نمونه بدون نانوذره افزایش پیدا کردند. همچنین برای مشاهده توزیع نانوذرات و نوع شکست، آنالیز سطح شکست نمونه‌ها انجام شده است.

*نویسنده مسئول: محمد امین بهرامی

پست الکترونیکی:

maba63@gmail.com

مقدمه

امروزه کامپوزیت‌های پلیمری تقویت‌شده با الیاف کربن (CFRP)^۱ به دلیل استحکام بالا، سختی زیاد و چگالی کم در بسیاری از فناوری‌های پیشرفته مانند هوافضا، صنایع نظامی، دریایی و خودرو استفاده می‌شوند. خاصیت ویسکوالاستیک مواد ماتریسی و استحکام برشی بین‌لایه‌ای (ILSS)^۲ بین الیاف و ماتریس، باعث میرایی و از دست دادن انرژی می‌شود [۱]. بهبود خواص مکانیکی ماتریس می‌تواند منجر به بهبود ظرفیت جذب انرژی شود؛ زیرا استحکام برشی بین لایه‌ای، لایه‌لایه شدن کامپوزیت را کنترل می‌کند [۲]. از این رو، بهبود خواص مکانیکی شامل تنش نهایی، مدول یانگ، استحکام برشی بین لایه‌ای و غیره جذب انرژی را افزایش می‌دهد.

بهبود قدرت پیوند الیاف/ماتریس در کامپوزیت‌ها برای انتقال بار بین دو فاز اصلی تشکیل‌دهنده بسیار مهم است. آنچه استفاده از مواد کامپوزیتی را محدود می‌کند (با وجود خواص مکانیکی خوب مواد تقویت‌کننده) شکنندگی مواد ماتریس است که یک اشکال اساسی محسوب می‌شود. ترکیب پرکننده‌های میکرو/نانومقیاس با ماتریس (اصلاح ماتریس) یکی از راه‌های غلبه بر این خواص ضعیف ماتریس است [۳]. نانوپرکننده‌ها می‌توانند مواد آلی یا معدنی باشند که حداقل یک بعد آنها در اندازه نانو است. همچنین آنها می‌توانند ساختارهای یک بعدی، دو بعدی و سه بعدی داشته باشند.

در سال‌های اخیر، بسیاری از مطالعات محققان در مورد نانومواد مبتنی بر کربن مانند نانولوله‌های کربنی (CNT)^۳، گرافن^۴ و نانوغرافن یا نانوغرافیت به دلیل خواص حرارتی، الکتریکی و مکانیکی عالی متمرکز شده‌اند [۴؛ ۵]. در تحقیقات اخیر، نشان داده شده است که گرافن (و مشتقات آن‌ها) می‌تواند باعث بهبود توزیع CNTها در ماتریس‌های پلیمری مانند اپوکسی شود. همچنین نشان داده شده است که ترکیب CNTها و گرافن (و مشتقات آن‌ها) تأثیر هم‌افزایی بر خواص مکانیکی ماتریس اپوکسی دارد [۶-۸]. هم‌افزایی CNTها و گرافن (و مشتقات آن‌ها) سفتی بیشتری را برای کامپوزیت‌های اپوکسی تقویت‌شده هیبریدی در مقایسه با اپوکسی خالص، کامپوزیت‌های تقویت‌شده با CNT و تقویت‌شده با گرافن نشان می‌دهد. مهم‌ترین موضوع در تأثیر هم‌افزایی نانوپرکننده‌ها در بهبود خواص مکانیکی کامپوزیت‌ها، اندازه ذرات و نسبت اختلاط برای پراکندگی همگن نانوپرکننده‌ها در مخلوط است.

در حال حاضر به خوبی ثابت شده است که ارتباط مناسب بین ماتریس و الیاف می‌تواند یکپارچگی ساختاری کامپوزیت‌ها را بهبود بخشد و انتقال تنش کارآمد از ماتریس به الیاف تقویت‌کننده را تضمین کند [۹]. با این حال، فعل و انفعالات سطحی بین الیاف کربن (CF)^۵ و ماتریس به دلیل عملکرد آب‌گریز و نسبتاً پایین سطح الیاف کربن، ضعیف است و خواص مکانیکی کامپوزیت‌ها را تحت تأثیر قرار می‌دهد [۱۰]. بنابراین، مطالعات گسترده‌ای در زمینه اصلاح سطحی الیاف کربن با استفاده از روش‌های مختلف انجام شده است که می‌تواند تعامل سطحی بین الیاف کربن و ماتریس را بهبود بخشد. یکی از این روش‌ها ترکیب گرافن و نانولوله‌های کربنی است که می‌تواند سطح و خواص مکانیکی کامپوزیت‌های اپوکسی تقویت‌کننده الیاف کربن را افزایش دهد. شین و همکاران [۱۱]، تأثیر نانوصفحه گرافن (GNP)^۶

¹ Carbon Fiber Reinforced Polymer

² InterLaminar Shear Strength

³ Carbon NanoTube

⁴ Graphene

⁵ Carbon Fiber

⁶ Graphene NanoPlate

را بر خواص مکانیکی کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی (CF/EP) برای درصدهای مختلف نانوصفحه گرافن بررسی کردند و ۲۶/۴ درصد افزایش استحکام برشی بین لایه‌های را به دست آوردند. شیائو و همکاران [۱۲] با افزودن CNTها بر سطح الیاف کربن مشخص کردند که استحکام خمشی، مقاومت کششی و استحکام برشی بین لایه‌های در مقایسه با کامپوزیت‌های بدون CNT به ترتیب ۱۵/۱، ۱۷/۶ و ۱۲/۶ درصد افزایش یافته است. لی و همکاران [۱۳] با افزودن CNTها روی سطح الیاف کربن نشان دادند که اصطکاک سطحی، پیوند شیمیایی و سفت شدن رزین، منجر به بهبود سطح کامپوزیت‌های الیاف کربن/اپوکسی به وسیله نانو ساختار می‌شود و استحکام برشی بین لایه‌های برای کامپوزیت ۴۳ درصد افزایش یافت. یائو و همکاران [۱۴] با افزودن CNTها بر سطح الیاف کربن مشخص کردند که استحکام برشی بین لایه‌های و استحکام خمشی به ترتیب در مقایسه با کامپوزیت‌های بدون CNT ۱۳ و ۲۰ درصد افزایش یافته است. یکی از مشکلات اصلی در مورد ترکیب CNT در کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی توزیع نامووار CNTها در سطح الیاف کربن و تجمع CNT به دلیل نسبت ابعاد زیاد و نیروهای ون در والس قوی است [۱۷]. یکی از راه‌های پیشنهادی برای حل این مشکل، استفاده از نانوذرات مانند نانوصفحات گرافن، نانوذرات رس، نیتريد بور و غیره است. CNTها همراه با گرافن، ساختاری سه بعدی ایجاد می‌کنند که از کلوخه شدن جلوگیری می‌کند و باعث تقویت سطح بین الیاف و ماتریس می‌شود [۱۵]. شین و همکاران [۱۶] تأثیرات هم‌افزایی GNP/CNTs ترکیبی را بر خواص سطحی و مکانیکی کامپوزیت‌های الیاف کربن بررسی کردند و نشان دادند که استحکام برشی بین لایه‌های کامپوزیت‌های CFRP با روکش ترکیبی GNP/CNT در مقایسه با کامپوزیت‌های الیاف کربن بدون روکش، ۹۰ درصد بیشتر است. پین نینگ و همکاران [۱۷] تأثیرات هم‌افزایی GNPها و نانولوله کربنی چندجداره (MWCNTs)^۱ ترکیبی را بر خواص مکانیکی کامپوزیت‌های الیاف کربن/اپوکسی بررسی کردند که استحکام برشی بین لایه‌های کامپوزیت‌ها برای نسبت اختلاط ۱ به ۹ (۱ درصد MWCNTs و ۹ درصد GNPها) ۴۰ درصد بیشتر نسبت به الیاف کربن/اپوکسی بدون نانوذرات است. با الهام از کار و پیشینه پیش گفته، در این تحقیق، تأثیر هم‌افزایی اکسیدگرافن کاهش یافته (RGO)^۲ و نانولوله کربنی چندجداره بر خواص خمشی و استحکام برشی بین لایه‌های کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی بررسی شده است. برای این منظور از آزمون خمش سه نقطه استفاده و نتایج آن گزارش شده است. برای ترکیب نانوذرات با اپوکسی از روش مخلوط‌سازی مستقیم و برای ساخت کامپوزیت‌ها از روش لایه‌گذاری دستی^۳ استفاده گردید. همچنین برای بررسی سطح شکست نمونه‌ها از میکروسکوپ الکترونیکی SEM^۴ بهره برده شد.

روش آزمایش

مواد مورد استفاده

الیاف کربن تک‌جهته JSUD۲۰۰، از شرکت یو چانگ چین، با استحکام کششی ۳/۵ GPa و مدول یانگ ۲۳۰ GPa تهیه شد. رزین اپوکسی مورد استفاده شامل دی‌گلیسیدیل‌اتر مبتنی بر بیسفنول A با نام تجاری (CY-۲۱۹) و سخت‌کننده آمینه (HY-۵۱۶۱) با نسبت اختلاط ۲ به ۱ از شرکت هانستن است که شرکت شیمی افسون عرضه کرده

¹ MultiWalled Carbon NanoTubes

² Reduced Graphene Oxide

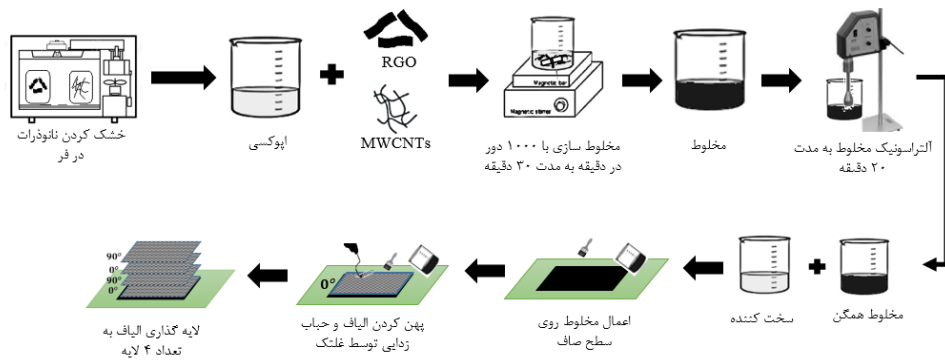
³ Hand Lay Up

⁴ Scanning Electron Microscopy

است. اکسیدگرافن کاهش‌یافته با ابعاد بین ۱ تا ۱۰ میکرون و ضخامت ۰/۸ تا ۲ نانومتر و خلوص بیشتر از ۹۸/۸ درصد و نانولوله کربنی چندجداره با طول میانگین ۱۰ میکرون و میانگین قطر خارجی ۲۵ نانومتر و درصد خلوص بیشتر از ۹۸/۸ از شرکت یونایتد نانوتک تهیه شدند.

آماده‌سازی نمونه‌های کامپوزیت

برای توزیع MWCNTs، RGO و MWCNTs/RGO به‌طور مؤثر در اپوکسی، ابتدا باید نانوذرات را در فر گذاشت تا خشک شوند. سپس، درصد معینی از آن‌ها با رزین اپوکسی مخلوط شد و مخلوط به مدت ۳۰ دقیقه در سرعت ۱۰۰۰ دور در دقیقه توسط هم‌زن مغناطیسی هم‌زده شد. پس از آن، مخلوط به مدت ۲۰ دقیقه اولتراسونیک شد تا مخلوط همگنی به‌دست آمد. سپس هاردنر به مخلوط اضافه شد و به مدت ۵ دقیقه هم‌زده شد. در ادامه با فرچه یک لایه از مخلوط روی سطح صاف اعمال شد و اولین لایه الیاف کربن که از قبل برش داده شده است در جهت صفر بر روی مخلوط قرار داده شد. سپس توسط غلتک حباب‌های داخل الیاف و اپوکسی خارج شد. این عمل برای چهار لایه الیاف کربن تکرار شد و نحوه چیدمان الیاف به‌صورت ۹۰/۰/۹۰/۰ درجه بود. مراحل ساخت نمونه در شکل ۱ آورده شده است.



شکل ۱. مراحل ساخت نمونه‌های کامپوزیت.

نمونه‌ها پس از آماده‌سازی، به‌وسیله واترجت برای آزمون خمش سه نقطه طبق استاندارد، برش داده شدند. نمونه‌ها برای آزمون‌های خمش به‌صورت جدول ۱ آماده و برای هرکدام پنج نمونه آزمون برش داده شد. درصد‌های انتخاب شده برای هرکدام از نانوذرات با توجه به مطالعه قبلی انتخاب شده است [۶].

جدول ۱. نمونه‌های آماده‌شده برای آزمون.

کد نمونه	رزین	الیاف	درصد RGO	درصد MWCNTs
FCE	اپوکسی	الیاف کربن تک‌جهته	۰	۰
FCER	اپوکسی	الیاف کربن تک‌جهته	۰.۶	۰
FCEMW	اپوکسی	الیاف کربن تک‌جهته	۰	۰.۰۴
FCEMWR	اپوکسی	الیاف کربن تک‌جهته	۰.۶	۰.۰۴

آزمون‌های مکانیکی

برای تعیین استحکام برشی بین‌لایه‌ای نمونه‌های کامپوزیت از استاندارد ASTM D۲۳۴۴ استفاده شد [۱۸]. نمونه‌ها با ابعاد $۲ \times ۱۰ \times ۵۰$ میلی‌متر مطابق شکل ۲a در دمای اتاق با سرعت ۱ میلی‌متر بر دقیقه تحت آزمون خمش سه نقطه قرار گرفتند. دهانه ۱۲ میلی‌متر، قطر دماغه بارگیری و تکیه‌گاه‌های جانبی به ترتیب ۶ میلی‌متر و ۳ میلی‌متر بود. برای تعیین استحکام برشی بین‌لایه‌ای از رابطه زیر استفاده شد.

$$ILSS = \frac{3P}{4bd} \quad (۱)$$

که در آن P ماکزیمم نیرو قابل تحمل، b پهنا و d ضخامت نمونه است.

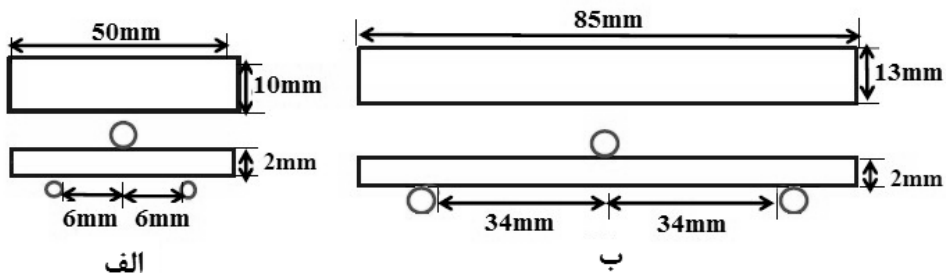
برای تعیین خواص خمشی نیز از استاندارد ASTM D۷۲۶۴ استفاده شد [۱۹]. نمونه‌ها با ابعاد $۲ \times ۱۳ \times ۸۵$ میلی‌متر مطابق شکل ۲b در دمای اتاق با سرعت ۳.۸ mm/min تحت آزمون قرار گرفتند. دهانه ۶۸ میلی‌متر، قطر دماغه بارگیری و تکیه‌گاه‌های جانبی ۱۰ میلی‌متر بود. برای تعیین تنش خمشی، کرنش خمشی و مدول خمشی از روابط زیر استفاده شده است.

$$\sigma_f = \frac{3PL}{2bd^2} \quad (۲)$$

$$\varepsilon_f = \frac{6Dd}{L^2} \quad (۳)$$

$$E_f = \frac{L^3m}{4bd^3} \quad (۴)$$

که در آن P ماکزیمم نیرو قابل تحمل، b پهنا نمونه، d ضخامت نمونه، L فاصله دو تکیه‌گاه، D بیشینه انحراف مرکز نمونه و m شیب خط الاستیک ابتدای نمودار نیرو جابه‌جایی حاصل از آزمون است.



شکل ۲. شماتیک نمونه آزمون الف) برای استحکام برشی بین‌لایه‌ای (ب) برای خمش.



شکل ۳. تجهیزات آزمایشگاهی برای آزمون خمش سه نقطه.

بررسی سطح شکست نمونه‌ها

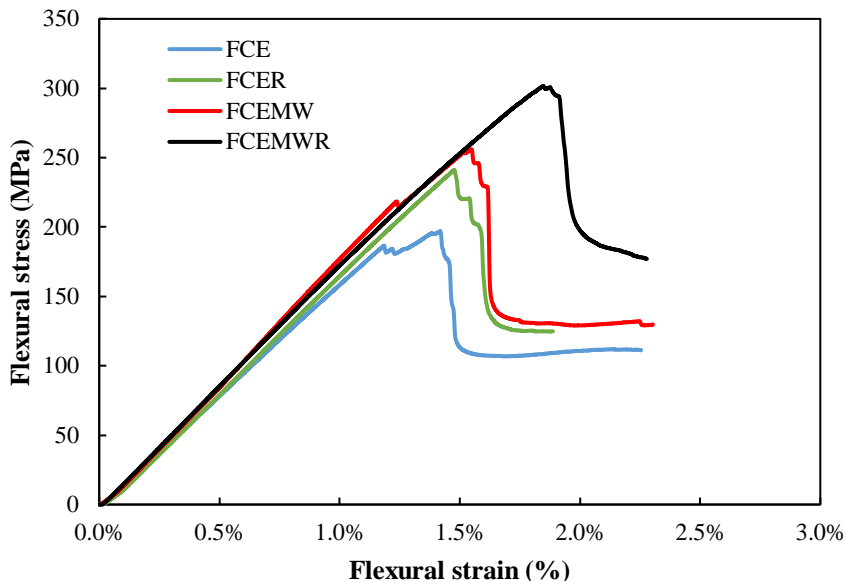
به منظور بررسی سطح شکست نمونه‌ها از میکروسکوپ الکترونیکی SEM مدل AIS2300C تحت ولتاژ شتابی ۲۲ kV استفاده شد که در شکل ۴-الف تصویر مربوط به آن آورده شده است. قبل از بررسی، سطوح شکستگی با استفاده از الکل تمیز شد و سپس با یک لایه نازک طلای تبخیر شده برای بهبود رسانایی پوشانده شد. این پوشش دهی در محیط خلأ توسط دستگاه پوشش دهی طلا hoyeon انجام شد و در شکل ۴-ب تصویر آن نشان داده شده است.



شکل ۴. الف) دستگاه میکروسکوپ الکترونیکی (SEM) ب) دستگاه پوشش دهی طلا.

نتایج و بحث

در شکل ۵ تغییرات نمودار تنش- کرنش خمشی نمونه‌های کامپوزیتی حاوی نانوذرات RGO، MWCNTs و MWCNTs/RGO نشان داده شده است. نتایج نشان می‌دهد که پاسخ خمشی نمونه‌ها با افزودن نانومواد به‌طور قابل توجهی تغییر کرده است. همان‌طور که مشخص شده است نمونه‌های FCEMW و FCER نسبت به نمونه FCE که در آن نانوذره استفاده نشده است دارای عملکرد بهتر است. این اولاً به دلیل افزایش استحکام اپوکسی است؛ زیرا وجود نانوذرات باعث جلوگیری از رشد ترک و شلوع شدن مسیر ترک می‌شود و برهم کنش بین ورقه‌های RGO با اپوکسی و MWCNTs با اپوکسی باعث جلوگیری از رشد و ایجاد ترک است که قبلاً بهرامی و همکاران [۶] گزارش کرده‌اند و ثانیاً به دلیل استحکام پیوند بین الیاف کربن و اپوکسی در حضور نانوذرات RGO و MWCNTs است که مشابه این رفتار را پیش‌تر شین و همکاران و شیائو و همکاران گزارش کرده‌اند [۱۱؛ ۱۲]. اما بیشترین میزان استحکام مربوط به نمونه FCEMWR است و این به دلیل تأثیر هم‌افزایی دو نانوذره است که باعث افزایش استحکام اپوکسی با بهبود برهم‌کنش بین نانوذرات و اپوکسی و فصل مشترک بین الیاف کربن و اپوکسی می‌شود؛ زیرا RGO باعث توزیع یکنواخت‌تر MWCNTs می‌شود؛ در نتیجه کلوخه‌های کمتری داخل ترکیب به وجود می‌آید. وجود کلوخه‌های کمتر باعث بهبود ساختار کامپوزیت و در نتیجه حذف تمرکز تنش در درون کامپوزیت می‌شود. وجود تمرکز تنش در کامپوزیت موجب ایجاد ترک و رشد آن می‌گردد. نکته دیگر اینکه با توجه به تصاویر SEM مشاهده می‌شود که با بهبود پیوند بین الیاف و اپوکسی آسیب ناشی از خمش کاهش پیدا کرده است.

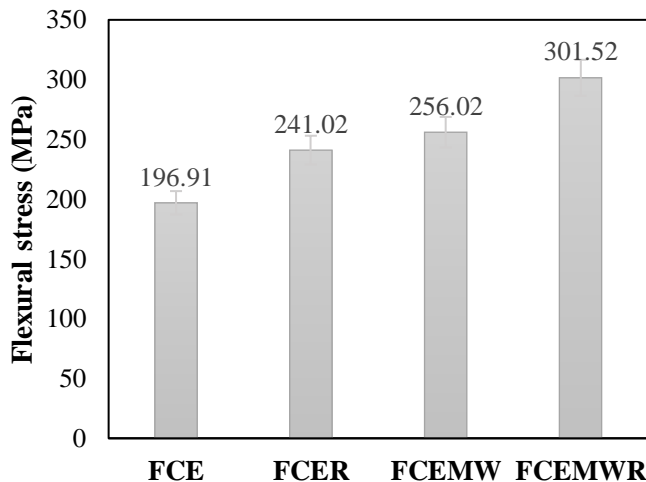


شکل ۵. منحنی تنش- کرنش خمشی برای نمونه‌های خمشی.

شکل‌های ۶، ۷ و ۸ تغییرات تنش خمشی، کرنش خمشی و مدول خمشی را برای نمونه‌های آزمون‌شده نشان می‌دهد. جدول ۲ نیز مقادیر مربوط به این پارامترها را با درصد تغییرات نسبت به نمونه بدون نانوذرات نشان می‌دهد. مطابق شکل ۶ مقدار تنش خمشی نمونه‌های FCE، FCER، FCEMW و FCEMWR نسبت به نمونه شاهد به ترتیب ۲۲/۴، ۳۰/۰۱ و ۵۳/۱۲ درصد افزایش یافته است. افزایش مقدار تنش خمشی همان‌طور که اشاره شد به دلیل وجود نانوذرات و افزایش استحکام اپوکسی و افزایش استحکام پیوند بین الیاف و اپوکسی است که بیشترین مقدار افزایش مربوط به نمونه FCEMWR است و این به دلیل تأثیر هم‌افزایی این دو نانوذره است. وجود MWCNTs در بین ورقه‌های RGO از تجمع ورقه‌های RGO جلوگیری می‌کند و در نتیجه میزان کلوخه‌ها کاهش می‌یابد. همچنین دو نانوذره با هم تشکیل یک ساختار سه بعدی با سطح تماس بیشتر می‌دهند؛ بنابراین چسبندگی بین الیاف و اپوکسی افزایش می‌یابد [۶].

جدول ۲. خصوصیات خمشی نمونه‌ها.

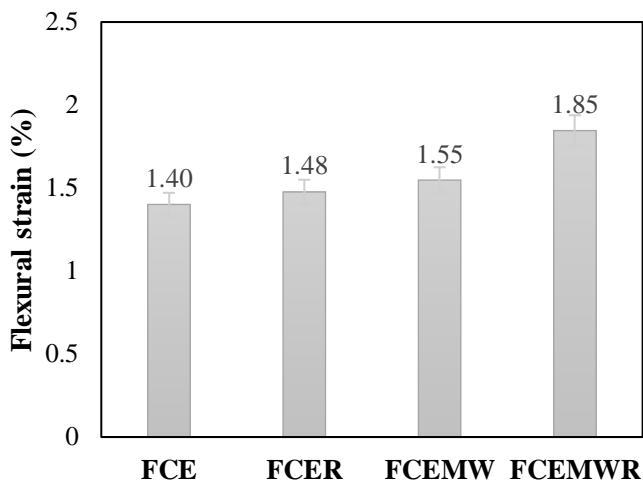
کد نمونه	تنش خمشی σ_f (MPa)	کرنش خمشی ϵ_f (%)	مدول خمشی E_f (GPa)
FCE	۱۹۶.۹۱ (۰٪)	۱.۴۰۱ (۰٪)	۱۶.۰۴ (۰٪)
FCER	۲۴۱.۰۲ (+۲۲.۴٪)	۱.۴۷۶ (+۵.۳۵٪)	۱۶.۹۳ (+۵.۵۴٪)
FCEMW	۲۵۶.۰۲ (+۳۰.۰۱٪)	۱.۵۴۷ (+۱۰.۴۲٪)	۱۸.۰۱ (+۱۲.۲۸٪)
FCEMWR	۳۰۱.۵۲ (+۵۳.۱۲٪)	۱.۸۴۶ (+۳۱.۷۶٪)	۱۷.۴۲ (+۸.۶٪)



شکل ۶. تغییرات تنش خمشی نمونه‌ها.

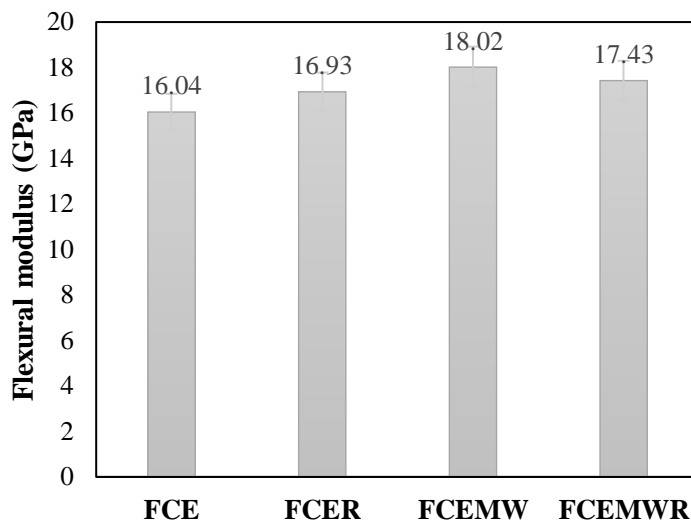
شکل ۷ تغییرات کرنش خمشی را برای نمونه‌ها تحت آزمون نشان می‌دهد. با توجه به شکل و جدول ۲ مشاهده می‌شود که روند تغییرات کرنش خمشی، مشابه تغییرات تنش خمشی است و برای نمونه‌های FCE، FCER و FCEMW نسبت به نمونه شاهد به ترتیب ۵/۳۵، ۱۰/۴۲ و ۳۱/۷۶ درصد افزایش یافته است. افزایش کرنش خمشی نیز به همان دلیلی است که تنش برشی افزایش پیدا کرده است با ذکر این نکته که وجود ترکیب MWCNTs/RGO

در سطح الیاف کربن با بیرون کشیدن و ایجاد تغییر شکل پلاستیکی اپوکسی، استحکام اپوکسی را در مجاورت رابط افزایش می‌دهد [۱۵].



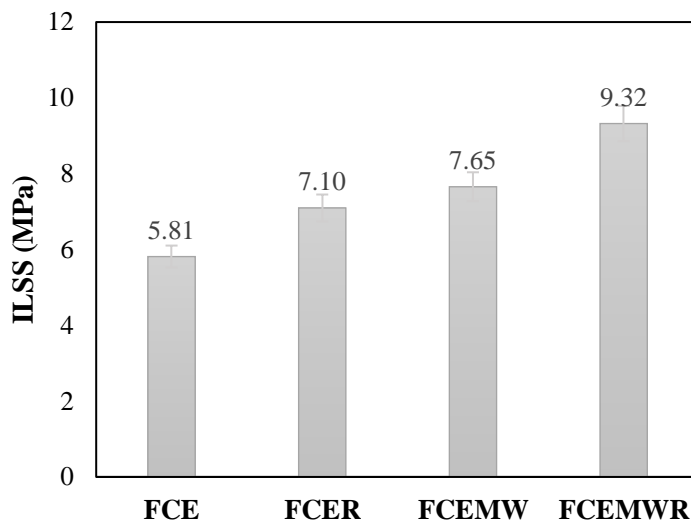
شکل ۷. تغییرات کرنش خمشی نمونه‌ها.

شکل ۸ تغییرات مدول خمشی را برای نمونه‌های تحت آزمون نشان می‌دهد. با توجه به شکل و جدول ۲ مشاهده می‌شود که روند افزایش مدول خمشی برای نمونه‌های FCER، FCEMW و FCEMWR نسبت به نمونه شاهد به ترتیب ۵/۵۴، ۱۲/۲۸ و ۸/۶ درصد است. افزایش مدول خمشی به واسطه وجود نانوذرات با مدول بالاتر در ترکیب اپوکسی است. همچنین برهم‌کنش‌های قوی کووالانسی و غیرکووالانسی بین نانوذره و اپوکسی باعث افزایش مدول خمشی می‌شود. برای نمونه FCEMWR مقدار مدول خمشی از نمونه FCEMW کمتر است و این می‌تواند به دلیل تشکیل برهم‌کنش‌های قوی‌تر کووالانسی و غیرکووالانسی بین نانوذره و اپوکسی باشد که مانع از تحرک زنجیرهای پلیمری می‌شود [۱۶].



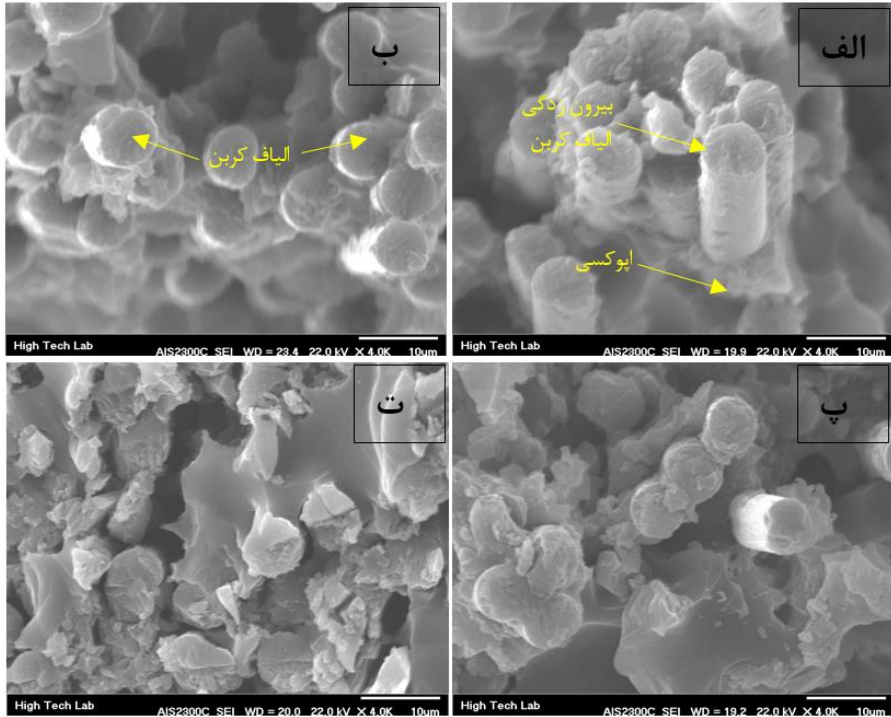
شکل ۸. تغییرات مدول خمشی نمونه‌ها.

شکل ۹ تغییرات استحکام برشی بین‌لایه‌ای را برای نمونه‌های آزمون شده نشان می‌دهد. افزایش استحکام برشی بین‌لایه‌ای برای نمونه‌های FCEMW، FCER و FCEMWR نسبت به نمونه شاهد به ترتیب ۲۲/۰۵، ۳۱/۶۷ و ۶۰/۳۷ درصد است. بیشترین بهبود استحکام برشی مربوط به نمونه FCEMWR است که به دلیل وجود دو نانوذره و تأثیر هم‌افزایی این دو نانوذره است. بیشترین نقش در افزایش استحکام برشی، پیوند بین الیاف و اپوکسی است؛ هرچه پیوند بین الیاف و اپوکسی قوی‌تر باشد استحکام برشی کامپوزیت نیز بیشتر است. این می‌تواند به دلیل وجود MWCNTs باشد که بین ورقه‌های RGO قرار می‌گیرد و از تجمع ورقه‌های RGO جلوگیری می‌کند. همچنین RGOها می‌توانند بین MWCNTs که ساختارهای مکمل را تشکیل می‌دهند نفوذ کند و قادر به تعامل و جلوگیری از تجمع مجدد در نتیجه جاذبه واندروالس شوند؛ بنابراین دو نانوذره ترکیبی سه‌بعدی ایجاد می‌کنند که باعث ایجاد سطح وسیعی می‌شود؛ پس سطح تماس را بهبود می‌بخشند و در رابط الیاف-اپوکسی قفل می‌شوند؛ در نتیجه چسبندگی سطحی بهبود می‌یابد. از طرفی MWCNTs می‌توانند به‌منزله پلی در ساختار ترکیبی سه‌بعدی عمل کنند که می‌تواند با زنجیره اپوکسی درهم تنیده و باعث ایجاد تعامل بهتر بین الیاف کربن و اپوکسی شود. نکته دیگر آنکه وجود ترکیب MWCNTs/RGO در سطح الیاف کربن با بیرون کشیدن و ایجاد تغییر شکل پلاستیکی اپوکسی، استحکام اپوکسی را در مجاورت رابط افزایش می‌دهد که برای انتقال تنش سطحی و مقاومت در برابر فشار مفید است؛ به طوری که فرایند شکست برشی رابط می‌تواند انرژی بیشتری را از بین ببرد. بنابراین، به‌طور مؤثر استحکام برشی بین‌لایه‌ای کامپوزیت FCEMWR افزایش می‌یابد [۱۶].



شکل ۹. استحکام برشی بین لایه‌های نمونه‌ها.

شکل ۱۰ تصاویر SEM مربوط به سطح شکست چهار نمونه FCE، FCER، FCEMW و FCEMWR را نشان می‌دهد. برای FCE، مقادیر زیادی الیاف کربن از ماتریس بیرون کشیده شد. سطح الیاف کربن خروجی تقریباً بدون اپوکسی است (شکل ۱۰-الف) که نشان‌دهنده چسبندگی سطحی ضعیف بین الیاف کربن و اپوکسی است اما برای شکل‌های ۱۰-ب، ۱۰-پ و ۱۰-ت مربوط به کامپوزیت‌های FCEMW، FCER و FCEMWR مقداری از اپوکسی روی سطح الیاف کربن باقی‌مانده و میزان بیرون‌کشیدگی الیاف کمتر است. کمترین میزان بیرون‌کشیدگی الیاف مربوط به نمونه FCEMWR است (شکل ۱۰-ت). این نشان می‌دهد که چسبندگی سطحی بین الیاف و اپوکسی افزایش یافته است. همچنین، استحکام خمشی کامپوزیت‌های FCER و FCEMW نزدیک به هم بودند. علاوه بر این، در مورد کامپوزیت FCEMWR چاله‌ها به‌ندرت یافت می‌شوند و میزان اپوکسی متصل به سطح الیاف خروجی بیشتر از سایر کامپوزیت‌ها است که نشان‌دهنده بالاترین چسبندگی سطحی در مقایسه با بقیه نمونه‌ها است. با افزودن نانوذرات، میزان ترشدگی و زبری سطح الیاف کربن و سطح تعامل بین الیاف کربن و اپوکسی افزایش یافته است [۱۶].



شکل ۱۰. تصویر سطح شکست الف) FCE (ب) FCER (پ) FCEMW (ت) FCEMWR

نتیجه‌گیری

در تحقیق حاضر، تأثیر هم‌افزایی دو نانوذره اکسیدگرافن کاهش‌یافته و نانولوله کربنی چندجداره بر خواص خمشی و استحکام برشی بین لایه‌ای کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی بررسی شد. نتایج مربوط به این تحقیق را می‌توان در موارد زیر خلاصه کرد:

- ۱- تنش خمشی، کرنش خمشی، مدول خمشی و استحکام برشی بین‌لایه‌ای کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی/نانواکسیدگرافن کاهش‌یافته به‌ترتیب حدود ۲۲/۴، ۵/۳۵، ۵/۵۴ و ۲۲/۲ درصد نسبت به کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی افزایش پیدا کرده است.
- ۲- تنش خمشی، کرنش خمشی، مدول خمشی و استحکام برشی بین‌لایه‌ای کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی/نانولوله کربنی چندجداره به‌ترتیب حدود ۳۰/۰۱، ۱۰/۴۲، ۱۲/۲۸ و ۳۱/۶۶ درصد نسبت به کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی افزایش پیدا کرده است.
- ۳- تنش خمشی، کرنش خمشی، مدول خمشی و استحکام برشی بین‌لایه‌ای کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی/نانولوله کربنی چندجداره/نانواکسیدگرافن کاهش‌یافته به‌ترتیب حدود ۵۳/۱۲، ۳۱/۷۶، ۸/۶ و ۶۰/۴۱ درصد نسبت به کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی افزایش پیدا کرده است.

- ۴- بیشترین میزان بهبود خواص خمشی و استحکام برشی بین‌لایه‌ای مربوط به کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی/نانولوله کربنی چندجداره/نانواکسیدگرافن کاهش یافته است که به دلیل تأثیر هم‌افزایی دو نانوذره است.
- ۵- افزودن نانواکسیدگرافن کاهش یافته به کامپوزیت الیاف کربن/اپوکسی/نانولوله کربنی چندجداره، باعث افزایش توزیع نانولوله کربنی چندجداره و در نتیجه افزایش برهم‌کنش بین الیاف کربن و اپوکسی می‌شود در نتیجه خواص خمشی و استحکام برشی بین‌لایه‌ای افزایش پیدا کرده است.

References

- [1] Tehrani, M., Yari Boroujeni, A., Hartman, T., Haugh, T. P., Case, S. W., & Al-Haik, M. (2013). Mechanical characterization and impact damage assessment of a woven carbon fiber reinforced carbon nanotube-epoxy composite. *Composites Science and Technology*, 75, 42–48. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2012.12.005>
- [2] Ulus, H., Ustun, T., Ahin, O., Karabulut, S., Eskizeybek, V., & Avc, A. (2015). Low-velocity impact behavior of carbon fiber/epoxy multiscale hybrid nanocomposites reinforced with multiwalled carbon nanotubes and boron nitride nanoplates. *Journal of Composite Materials*, 50(6), 761-770. <https://doi.org/10.1177/0021998315580835>
- [3] Šupová, M., Martynková, G. S., & Barabaszová, K. (2011). Effect of Nanofillers Dispersion in Polymer Matrices: A Review. *Science of Advanced Materials*, 3(1), 1-25. <https://doi.org/10.1166/sam.2011.1136>
- [4] Ahmad, S. R., Xue, C., & Young, R. J. (2017). The mechanisms of reinforcement of polypropylene by graphene nanoplatelets. *Materials Science and Engineering: B*, 216, 2-9. <https://doi.org/10.1016/j.mseb.2016.10.003>
- [5] Kumar, A., Sharma, K., & Dixit, A. R. (2021). A review on the mechanical properties of polymer composites reinforced by carbon nanotubes and graphene. *Carbon Letters*, 31(2), 149-165. <https://doi.org/10.1007/s42823-020-00161-x>
- [6] Bahrami, M. A., Heshmati, M., & Feli, S. (2021). A study on the synergistic influence of reduced graphene oxide and MWCNTs on the mechanical properties of epoxy nanocomposite. *Amirkabir Journal of Mechanical Engineering*, 53(6), 1-16. <https://doi.org/10.22060/mej.2020.18781.6888>
- [7] Li, Y., Umer, R., Isakovic, A., Samad, Y. A., Zheng, L., & Liao, K. (2013). Synergistic toughening of epoxy with carbon nanotubes and graphene oxide for improved long-term performance. *Royal Society of Chemistry Advances*, 3(23), 8849-8856. <https://doi.org/10.1039/C3RA22300K>
- [8] Papageorgiou, D. G., Kinloch, I. A., & Young, R. J. (2017). Mechanical properties of graphene and graphene-based nanocomposites. *Progress in Materials Science*, 90, 75-127. <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2017.07.004>
- [9] Chen, J., Wang, K., & Zhao, Y. (2018). Enhanced interfacial interactions of carbon fiber reinforced PEEK composites by regulating PEI and graphene oxide complex sizing at the interface. *Composites Science and Technology*, 154, 175-186. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2017.11.005>
- [10] Vedrtnam, A. (2019). Novel method for improving fatigue behavior of carbon fiber reinforced epoxy composite. *Composites Part B: Engineering*, 157, 305-321. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.08.062>

- [11] Qin, W., Vautard, F., Drzal, L. T., & Yu, J. (2016). Modifying the carbon fiber-epoxy matrix interphase with graphite nanoplatelets. *Polymer Composites*, 37(5), 1549-1556. <https://doi.org/10.1002/pc.23325>
- [12] Xiao, C., Tan, Y., Wang, X., Gao, L., Wang, L., & Qi, Z. (2018). Study on interfacial and mechanical improvement of carbon fiber/epoxy composites by depositing multi-walled carbon nanotubes on fibers. *Chemical Physics Letters*, 703, 8-16. <https://doi.org/10.1016/j.cplett.2018.05.012>
- [13] Li, M., Gu, Y., Liu, Y., Li, Y., & Zhang, Z. (2013). Interfacial improvement of carbon fiber/epoxy composites using a simple process for depositing commercially functionalized carbon nanotubes on the fibers. *Carbon*, 52, 109-121. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2012.09.011>
- [14] Yao, H., Sui, X., Zhao, Z., Xu, Z., Chen, L., Deng, H., Liu, Y., & Qian, X. (2015). Optimization of interfacial microstructure and mechanical properties of carbon fiber/epoxy composites via carbon nanotube sizing. *Applied Surface Science*, 347, 583-590. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2015.04.146>
- [15] Bisht, A., Dasgupta, K., & Lahiri, D. (2020). Evaluating the effect of addition of nanodiamond on the synergistic effect of graphene-carbon nanotube hybrid on the mechanical properties of epoxy based composites. *Polymer Testing*, 81, 106274. <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2019.106274>
- [16] Qin, W., Chen, C., Zhou, J., & Meng, J. (2020). Synergistic Effects of Graphene/Carbon Nanotubes Hybrid Coating on the Interfacial and Mechanical Properties of Fiber Composites. *Materials*, 13(6), 1-12. <https://doi.org/10.3390/ma13061457>
- [17] Wang, P-N., Hsieh, T-H., Chiang, C-L., & Shen, M-Y. (2015). Synergetic effects of mechanical properties on graphene nanoplatelet and multiwalled carbon nanotube hybrids reinforced epoxy/carbon fiber composites. *Nanomaterials*, 2015, 1-9. <https://doi.org/10.1155/2015/838032>
- [18] American Society for Testing and Materials. (2000). *Standard Test Method for Short-Beam Strength of Polymer Matrix Composite Materials and Their Laminates* (ASTM D2344/D2344M). American Society for Testing and Materials. https://lhc-div-mm.s.web.cern.ch/tests/MAG/docum/Radiation_resistance/IrradiationTestCampaign/SBS%20Test/ASTM%20D2344M.pdf
- [19] American Society for Testing and Materials. (2010). *Standard Test Methods for Flexural Properties of Unreinforced and Reinforced Plastics and Electrical Insulating Materials* (ASTM 790-10). American Society for Testing and Materials. <https://pdfcoffee.com/nor-ma-astm-d790-10pdf-5-pdf-free.html>