

高性能纤维增强聚醚醚酮复合材料 挤出成型增材制造现状与挑战*

罗盟¹, 田小永¹, 尚俊凡¹, 秦滢杰^{1,2}, 朱伟军³, 李涤尘¹, 陈怡⁴

(1. 西安交通大学机械制造系统工程国家重点实验室, 西安 710049;

2. 西安航天复合材料研究所, 西安 710025;

3. 北京航空航天大学机械工程及自动化学院, 北京 100191;

4. 北京卫星制造厂, 北京 100094)

[摘要] 材料挤出成型是一种典型的增材制造技术,其通过高温加热,将热塑性聚合物或其复合材料熔融挤出,而后逐层累积成型。它具有无需模具、可成型复杂零部件、低成本等显著优势,在生物医疗、航空航天、汽车工业等多个领域有着广泛的应用前景。聚醚醚酮作为一种半晶态超强热塑性聚合物,其纤维增强复合材料具有轻质高强、热稳定性好、化学稳定性佳等优异特性。利用材料挤出成型工艺制备纤维增强聚醚醚酮复合材料,可实现零部件的高性能低成本快速制造。介绍了纤维增强聚醚醚酮复合材料挤出成型制造技术的发展现状,分别从成型工艺机理、技术发展及性能对比等几个方面展开论述,并系统分析了未来技术发展所面临的挑战。

关键词: 增材制造; 材料挤出; 聚醚醚酮; 复合材料; 纤维

DOI:10.16080/j.issn1671-833x.2020.15.039



罗盟

博士研究生,主要研究方向为连续纤维复合材料挤出成型技术。

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFB1103400, 2016YFB1100902)。

聚醚醚酮(Poly-ether-ether-ketone, PEEK)是一种半晶态超强工程塑料,有着优异的力学性能、耐高温性能、耐腐蚀性能以及生物相容性等。PEEK已经被应用在生物骨骼移植、航空航天及汽车工业等多个领域^[1-4]。随着航空航天领域对材料轻质高强性能的迫切需求,包含纤维增强PEEK复合材料在内的多种热塑性复合材料便相继发展起来^[3-4]。因此,围绕纤维增强PEEK复合材料构件成型技术的研究,便成为了新材料与制造学科交叉创新的前沿。截至目前,已有多种传统工艺可用于纤维增强PEEK复合材料构件成型的制造,其中包括注塑成型和热压成型、自动铺带技术

等。注塑成型是通过将PEEK与短切纤维共混注入模具中在高温下实现快速成型的一种制造技术。钟明强等^[5]通过注塑成型实现了短切碳纤维增强PEEK(SCF/PEEK)复合材料的制造,并初步报道了注塑制件内纤维的取向和PEEK的结晶都会对制件的综合性能产生较大的影响。热压成型是一种针对纤维增强PEEK复合编织网、复合薄板等半成品材料的二次成型制造技术。Yoon等^[6]于1993年利用连续碳纤维与PEEK丝材进行编织,并配合热压工艺制备连续碳纤维增强PEEK(CCF/PEEK)复合材料样件;2004年,Fujihara等^[7]使用更加致密的微编织工艺配合热压成型技术实现了

在 380℃ 的热压温度和 20min 保持时间下, 弯曲模量和抗弯强度分别达到 95GPa 和 1300MPa 的高性能 CCF/PEEK 复合材料的制备。自动铺带技术是对浸渍有 PEEK 的连续碳纤维 (CCF) 预浸带在具有一定形状的底模上依次铺放并通过热压辊实时热压成型的一种制造技术。秦滢杰等^[8]研制了 T700 碳纤维增强聚醚醚酮的预浸带, 并将相关产品成功交付卫星使用。

传统制造工艺已经大大推动了纤维增强 PEEK 复合材料的应用。而随着近年来航空航天等诸多应用领域对于复杂结构制件的低成本制造需求的增加, 利用增材制造技术成型纤维增强 PEEK 复合材料制件便体现出较大的成型优势。目前, 可用于成型纤维增强 PEEK 复合材料的增材制造技术主要有粉末床熔融成型和材料挤出成型两种。其中粉末床熔融成型技术是以激光作为能量源对短纤与 PEEK 混合粉末进行逐层选区域扫描熔融, 并叠加成型的一种增材制造技术。Yan 等^[9]通过粉末床熔融工艺制备出了碳纤维含量为 10% 的 SCF/PEEK 复合材料, 其拉伸强度达到 109MPa, 相比注射成型的纯 PEEK 材料性能提升达 85%。材料挤出成型即熔融沉积成型技术是一种主要面向热塑性树脂材料体系的快速成型技术。该技术通常采用高温加热使得热塑性树脂丝材迅速熔融, 而后通过不断进给和挤出, 最终逐层累积成型目标制件^[10]。相比于传统制造工艺, 具有无需模具、可成型复杂零部件及定制化制造的优势; 而相比于粉末床熔融成型, 具有绿色环保、工艺简单、成本低等优点。截至目前, 已有多种材料可通过材料挤出技术进行制备, 包括聚乳酸 (PLA)^[11]、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚物 (ABS)^[12]、尼龙 (Nylon)^[13]、聚醚醚酮 (PEEK)^[14] 以及多种树

脂基复合材料^[15-19]。针对 PEEK 等半晶态聚合物, 材料挤出成型温度可达到 400℃ 以上, 并可通过成型工艺控制实现从无定型态到半晶态树脂的多样化制备。近年来, 许多研究人员成功地通过材料挤出成型技术制备了碳纳米管 (CNT) 和短切碳纤维 (SCF) 等短纤增强 PEEK 复合材料制件, 部分已进入应用测评阶段^[20-24]。2016 年, 西安交通大学研究人员提出了连续纤维增强复合材料挤出成型工艺, 实现了 CCF/PEEK 复合材料挤出成型制造^[25], 其制件的弯曲强度达到了 480MPa^[26], 已超过现有各类铝合金的抗弯强度, 再次扩展了纤维增强 PEEK 复合材料的制造技术范畴, 为未来的多领域应用奠定了基础。

本文将针对高性能纤维增强 PEEK 复合材料挤出成型增材制造技术的发展现状进行综述, 重点讨论连续纤维增强 PEEK 复合材料挤出成型关键技术与研究进展, 并对未来所面临的技术挑战进行分析。

短切纤维增强 PEEK 复合材料挤出成型

1 基本工艺与现状

如图 1 所示, 短切纤维增强 PEEK 复合材料工艺主要包含 3 个阶段: (1) 纤维与 PEEK 混合挤出形成复合丝材; (2) 复合丝材在挤出成型设备中高温熔融; (3) 熔融后挤出并逐层累加形成复合材料制件。为了保证材料的充分混合及制备丝材的稳定成型, 双螺杆挤出机通常被用于挤出复合丝材。

短切纤维增强 PEEK 复合材料挤出成型工艺采用的纤维主要包含 CNT 和 SCF 两种。2015 年 6 月, Davies 等^[20]在第 20 届国际复合材料大会 (ICCM) 上报道了利用材料挤出成型技术分别制备了 CNT 含量为 1% 和 5% 的 CNT/PEEK 复合材料。Han 等^[22]利用材料挤出成型制造技术制备了 SCF/PEEK 复合材料生物样件, 并通过一系列力学性能及生物活性评估证实了 SCF/PEEK 复合材料在生物骨移植及组织工程应

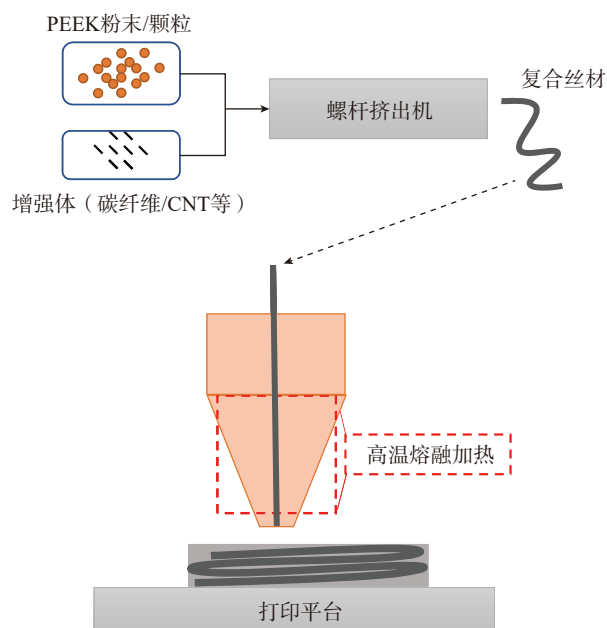


图1 短切纤维增强PEEK复合材料挤出成型工艺过程

Fig.1 Process of short carbon fibers reinforced PEEK composites extrusion

用中的可行性。Hu 等^[21]则利用材料挤出成型技术制备了 SCF/PEEK 复合材料空间膜加强肋,如图 2 所示,并通过测试得出 SCF/PEEK 复合材料加强肋能够有效改善膜的抗裂纹生长性能。

2 短切纤维对 PEEK 复合材料性能的主要影响

2.1 热传导性能

SCF 和 CNT 有着较高的热传导率,将其与 PEEK 结合势必会影响制件整体的热传导性能。Stepashikin 等^[23]便将材料挤出成型工艺制备的 SCF/PEEK 复合材料样件分别与传

统浇注工艺制备的 SCF/PEEK 复合材料和挤出成型的纯 PEEK 样件进行了热传导性能的对比,发现相较纯 PEEK 材料,含有 20% SCF 的 SCF/PEEK 复合材料的热传导率能提高 20%~25%,而注塑成型的同等碳纤维含量的 SCF/PEEK 复合材料热传导率能提升近 200%,这是因为在挤出成型制件内部存在着大量的孔隙和弱界面,如图 3 所示。这些 SCF/PEEK 复合材料挤出成型制件内部分布的多层级孔隙(层间间隙和层内缺陷)容易形成各个方向不同程度的热传导阻力,故而导致 SCF/PEEK

复合材料挤出成型制件热传导性能改善的有限性。Davies 等^[20]通过将威格斯 PEEK450G 分别与 1% 和 5% 的 CNT 进行复合挤出制备 CNT/PEEK 复合材料制件,研究发现复合 CNT 之后,制件的热传导率提高约 18%,从而有效降低制备过程中的区域温差并提高冷却效果,提高整体制件热分布的均匀性,实现 PEEK 制件热传导性能的有效改善。

2.2 力学性能

中国科学院空间应用工程与技术中心研究团队^[24]通过材料挤出成型技术制备出了质量分数为 5% SCF 的 SCF/PEEK 复合材料制件,通过分析得出在高温熔融挤出过程中,SCF 会沿打印方向进行取向性分布,从而形成制件各向异性,因此,设计如图 4 (a) 所示的两种不同挤出方向的标准样件进行性能测试,得出水平方向挤出成型的样件相比注塑件和挤出成型的纯 PEEK 样件都有着明显的性能降低,如图 4 (b) 所示;通过对制件进行微米 CT 扫描,发现制件内部在引入短切碳纤维的同时,会形成非常多的规律分布的层间孔隙,如图 4 (c) 所示,这些孔隙会在制件承受弯曲载荷时加剧其失效进程,从而造成性能降低;而通过对比发现虽然垂直方向挤出成型的 SCF/PEEK 复合材料样件的内部孔隙率并未降低,如图 4 (d) 所示,但其弯曲强度却能提升到 146MPa,已非常接近传统注塑件 148MPa 的弯曲强度,可见通过改善纤维排布方式能够一定程度提高制件的力学性能。

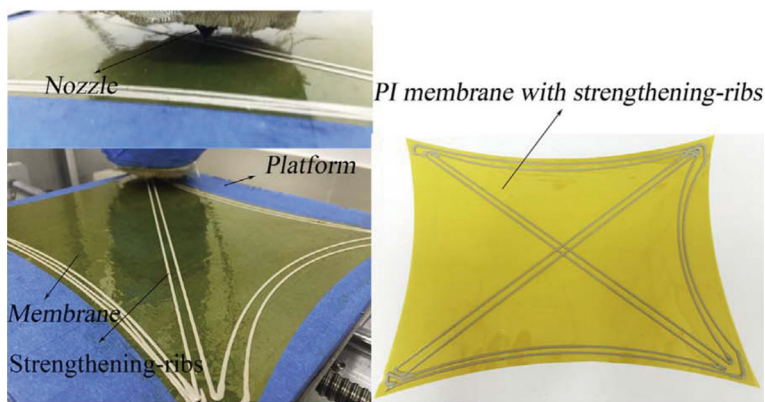
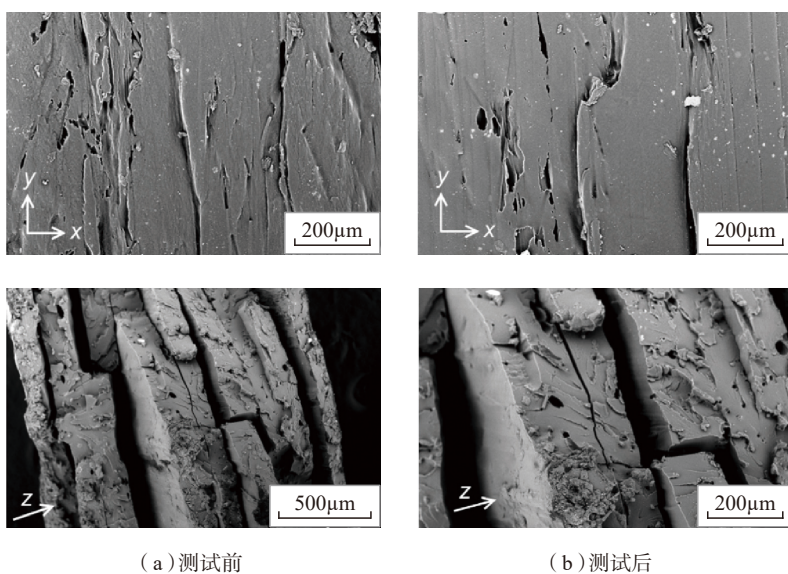


图2 挤出成型制造SCF/PEEK复合材料加强肋用于聚酰亚胺膜增强

Fig.2 Strengthening-ribs fabricated by SCF/PEEK composites extrusion process for strengthening PI membrane



(a) 测试前

(b) 测试后

图3 20% SCF/PEEK 复合材料样件测试前和测试后截面电镜图

Fig.3 SEM photos of 20% SCF/PEEK composite samples before and after mechanical test

连续纤维增强 PEEK 复合材料挤出成型

1 基本工艺与现状

PEEK 作为一种高熔点聚合物,其熔融挤出温度高达 400℃。碳纤维作为一种耐高温纤维,能够满足高温下的性能保持。因此,目前用于连续纤维增强 PEEK 复合材料挤出成

型的增强体便以连续碳纤维(CCF)为主。CCF/PEEK 复合材料挤出成型工艺原理如图 5 所示,主要分为 3 个阶段:(1)碳纤维预浸丝的制备;(2)PEEK 在高温下熔融并与碳纤维预浸丝实时复合;(3)CCF/PEEK 复合材料的挤出与逐层累加成型。不同于短切纤维增强 PEEK 复合材料,CCF/PEEK 复合材料在第 1 阶段的预处理中,CCF 只与少量 PEEK 复合形成碳纤维预浸丝,纤维含量等工艺参数调节主要通过控制第 2 阶段的 PEEK 进给来实时调控的。

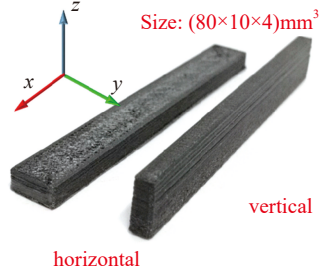
目前,公开报道的关于 CCF/PEEK 复合材料挤出成型的研究非常少。Stepashikin 等^[23]在 2018 年进行 SCF/PEEK 复合材料报道时,初步讨论了 CCF/PEEK 复合材料挤出成型制件的热传导效果,并提出 3D 打印过程中对 CCF 走向进行定向铺放,可以为未来制备各向异性的定制化结构件提供新思路。2019 年到 2020 年,西安交通大学研究人员对 CCF/PEEK 复合材料挤出成型技术进行了详细报道,并针对 CCF/PEEK 复合材料内部不同尺度弱结合界面的形成机理及优化工艺展开研究,实现了高性能 CCF/PEEK 复合材料挤出成型制造,图 6 为该研究团队制备的 CCF/PEEK 复合材料构件^[26-27]。

2 CCF/PEEK 复合材料多尺度界面及性能

2.1 多尺度弱界面形成机理及优化策略

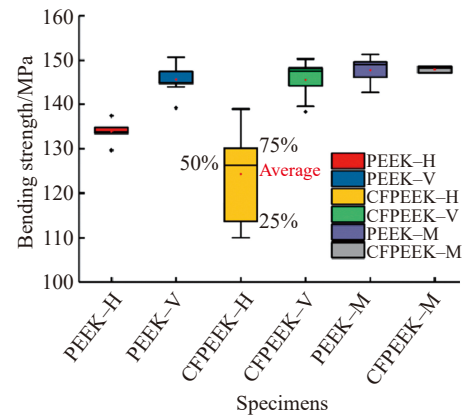
CCF/PEEK 复合材料存在着如图 7 所示的两种弱结合界面。第 1 层弱界面是由于碳纤维表面包裹的热固性环氧树脂难以与热塑性 PEEK 有效结合而形成的微观弱界面,如图 7 (a) 所示;第 2 层界面是由于挤出成型过程中已成型层在层间结合点温度(约 110℃)远低于玻璃化转变温度而造成层间的弱结合界面,如图 7 (b) 所示。而这两种

弱结合界面使得 CCF/PEEK 复合材料样件在弯曲载荷作用下容易发生层间剥离失效。

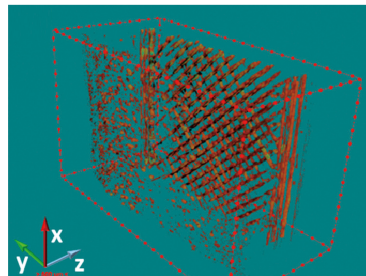


(a) 测试样件

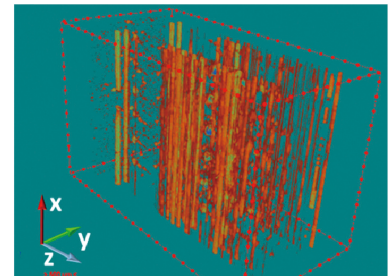
研究采用激光-等离子体双重界面优化策略进行界面改善,如图 8 所示。在阶段 I,使用大气常温等离



(b) 弯曲强度测试结果



(c) 水平挤出的 SCF/PEEK 复合材料制件



(d) 垂直挤出的 SCF/PEEK 复合材料制件

图4 SCF/PEEK复合材料力学性能研究

Fig.4 Mechanical properties research on SCF/PEEK composites

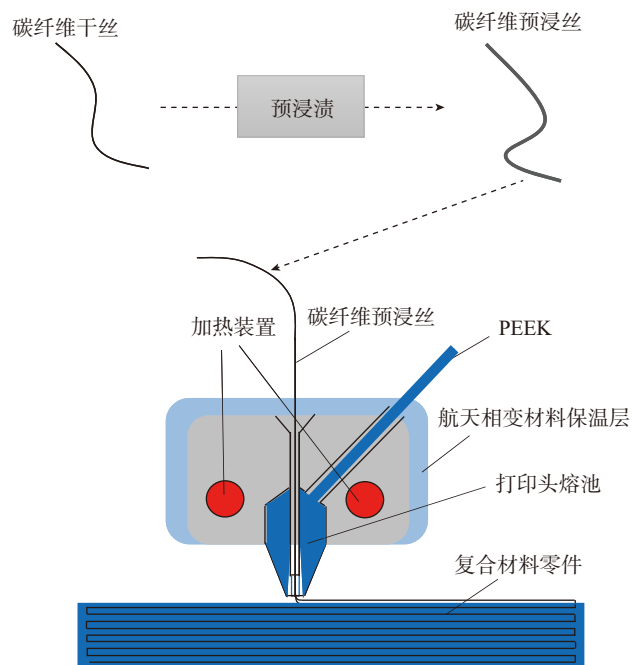


图5 CCF/PEEK复合材料挤出成型工艺原理

Fig.5 Schematic diagram of CCF/PEEK composites extrusion process

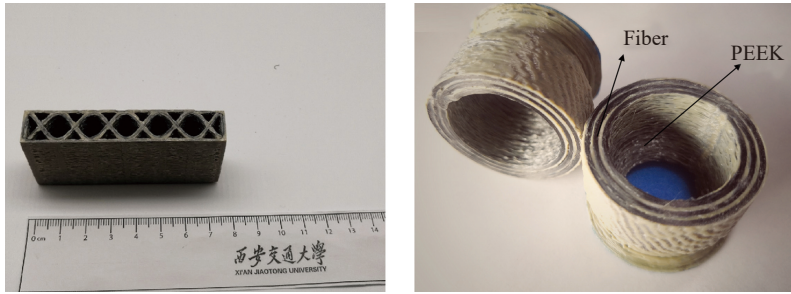


图6 CCF/PEEK复合材料挤出成型构件

Fig.6 Structural parts fabricated by CCF/PEEK composites extrusion process

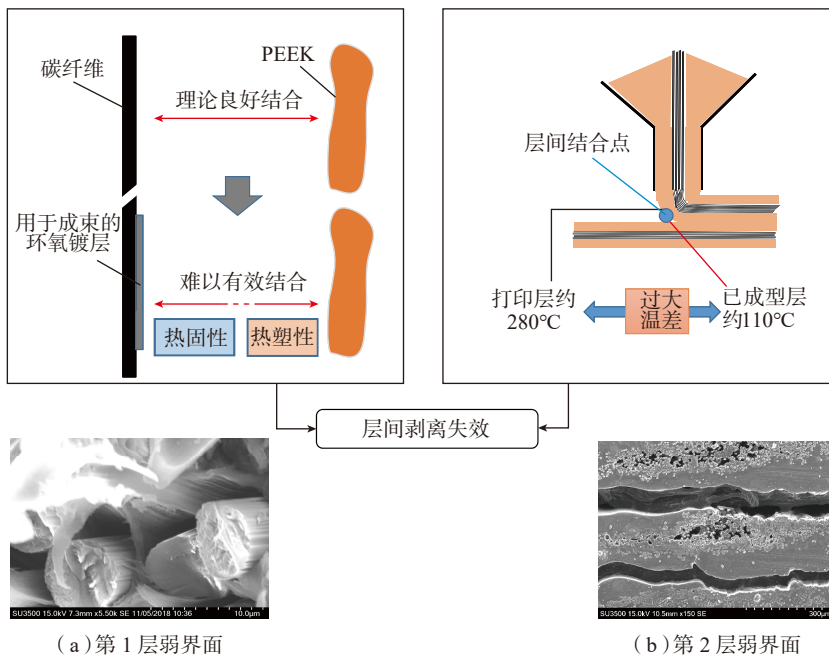


图7 CCF/PEEK复合材料挤出成型双尺度弱界面形成

Fig.7 Dual scale weak interfaces formation during CCF/PEEK composites extrusion

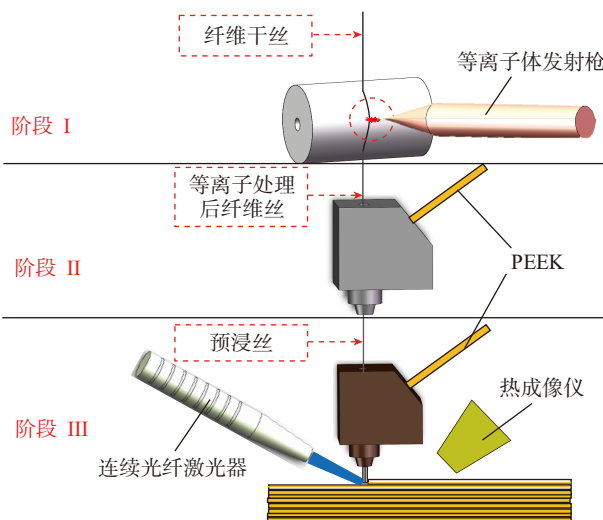


图8 CCF/PEEK工艺优化策略示意图

Fig.8 Schematic diagram of optimization of CCF/PEEK composites extrusion process

子体处理碳纤维干丝表面,实现表面清洁和有效激活;在阶段 II,将等离子处理后纤维快速通过熔融腔与高温下熔融的 PEEK 进行有效复合从而获得碳纤维预浸丝;到了阶段 III,将预浸丝与 PEEK 再次进行熔融复合和挤出成型,并利用激光对层间结合点进行局部实时预热,通过快速温度提升改善层间结合性能。

2.2 界面优化策略对 CCF/PEEK

复合材料性能的影响

为了改善碳纤维与 PEEK 的结合性能,采用大气常温等离子体实时处理包裹有热固性环氧树脂的碳纤维干丝。发现等离子体能够有效清除碳纤维表面的杂质、打散碳纤维并加深碳纤维表面的沟壑,从而增大与 PEEK 结合的比表面积。同时等离子体能够增加碳纤维表面的 O、N 元素,从而增加碳纤维表面的化学活性。如图 9 所示^[27],当层厚、扫描间距及打印速度分别为 0.2mm、1.0mm 和 120mm/min 时,不同等离子体处理距离(可等效为等离子体强度)对层间剪切强度(ILSS)均有着显著的改善。相比未进行等离子体处理(距离为无穷大)的 CCF/PEEK 复合材料样件,等离子处理后样件的 ILSS 可提升 55%~70%,最高可从 (5.78 ± 1.4) MPa 提升至 (9.15 ± 1.84) MPa。

为了改善 CCF/PEEK 复合材料的层间结合界面,研究通过施加实时激光预热来快速提高层间结合点的温度,并通过控制激光功率来调整打印过程中热积累。如图 10 所示^[26],当层厚、扫描间距及打印速度分别为 0.2mm、1.0mm 和 120mm/min 时,随着激光功率增加,层间结合点温度随之增加,而 ILSS 呈现先增大后减小的趋势。这是因为当层间结合点温度随着激光功率稳步提升时,相邻层间的分子渗透逐步改善。当激光功率大于 10W 时,层间结合点温度高于 PEEK 材料的部分老化分解温

度(420℃),从而导致结合性能逐步变差。当激光功率为10W时,CCF/PEEK复合材料样件的ILSS达到最高(27.45±2.6)MPa。而当扫描间距缩小至0.5mm时,纤维体积含量可增加至约38%,所制备复合材料的

ILSS可达(39.05±2.1)MPa。

2.3 不同纤维增强PEEK复合材料挤出成型工艺对比

CCF/PEEK复合材料与SCF/PEEK复合材料及CNT/PEEK复合材料力学性能及成型参数的对比分析见表1^[28]。通过对比短梁剪切测试及弯曲测试结果,可得出相比短切纤维增强PEEK复合材料,CCF/PEEK复合材料的ILSS、弯曲强度及弯曲模量都有着非常显著的提高。成型参数方面见表2^[28]。可以看出CCF/PEEK复合材料相比短切纤维增强PEEK复合材料有着较低的打印速度和较大的喷嘴直径,从而一定程度上会引起制件精度和效率的降低。

本文通过系统地分析对比,可以得出不同纤维增强PEEK复合材料有着不同的优势和局限。如表3所示,相比短切纤维增强PEEK复合材料,CCF/PEEK复合材料挤出成型技术能够更好地发挥纤维的增强潜力,从而显著提高制件的力学性能。但与此同时,纤维水平面内的分布方式导致其依然存在着明显的各向异性;而较大的喷嘴直径和较低的打印速度也同时限制了其制件精度和成型效率。

面临的挑战

随着PEEK复合材料挤出成型技术的快速发展,日益多样化的应用需求对其材料、工艺和性能优化都提出了许多亟待解决的难题和挑战。

相比于传统热压及自动铺带技术,材料挤出成型缺少过程中的热压处理来提高纤维含量及构件致密度,尤其是针对CCF/PEEK复合材料挤出成型工艺。PEEK的高熔点使其在材料挤出成型过程中容易快速冷却,而其低流动性的特性又限制了其与碳纤维丝束的浸渍度及浸渍均匀性。因此,为了保证成型效果,材料挤出成型比传统制备工艺需要更

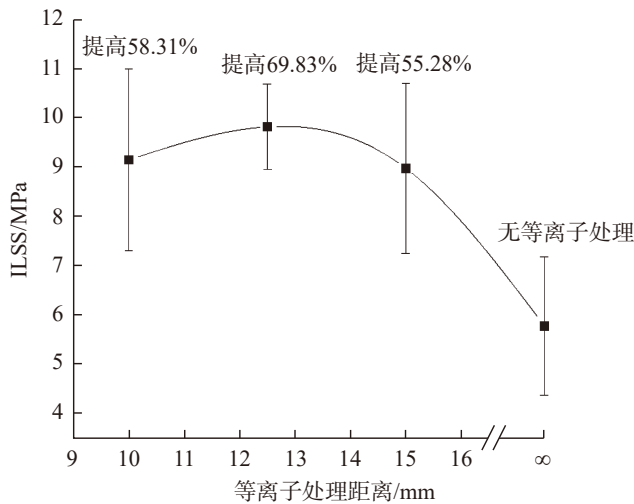


图9 不同等离子处理距离下CCF/PEEK复合材料的ILSS

Fig.9 ILSS of CCF/PEEK composites at different plasma distance

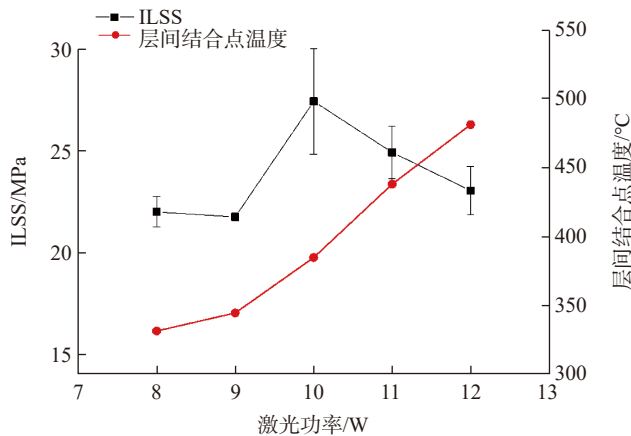


图10 不同界面优化工艺对ILSS影响

Fig.9 ILSS of CCF/PEEK composites with different interface-optimization processes

表1 不同挤出成形纤维增强PEEK复合材料性能对比

Table 1 Mechanical properties comparison of different fiber-reinforced-PEEK composites by materials extrusion fabrication

样件类型	ILSS/MPa	弯曲强度 /MPa	弯曲模量 /GPa	文献
1% CNT/PEEK	33 ± 10	—	—	[28]
5% CNT/PEEK	21 ± 5	—	—	[28]
SCF/PEEK	19.1 ± 3.2	146 ± 4.2	3.74 ± 0.09	[24]
SCF/PEEK	—	159.25 ± 13.54	5.41 ± 0.51	[22]
CCF/PEEK	39.05 ± 2.1	480	37.95	[26-27]

表2 不同纤维增强PEEK复合材料挤出成型参数对比

Table 2 Extrusion parameters comparison of different fiber-reinforced-PEEK composites

样件类型	层厚/mm	喷嘴直径/mm	线宽/mm	打印速度/(mm·min ⁻¹)	加热温度/℃	文献
CNT/PEEK	—	—	—	1800	350~390	[28]
SCF/PEEK	0.2	0.4	0.4	2400	420	[22]
SCF/PEEK	0.25	0.35	0.35~0.45	100	380~400	[23]
SCF/PEEK	0.1	0.4	0.18	900	400	[24]
CCF/PEEK	0.2	1.5	1.0	120	410	[26~27]

表3 不同纤维增强PEEK复合材料特性分析

Table 3 Characteristics of different fiber-reinforced-PEEK composites

复合材料类型	主要优势	局限
短切纤维增强 PEEK 复合材料	挤出成型工艺过程简单、打印速度较高	纤维含量难以提高、力学性能差、样件存在明显各项异性、内部闭合孔隙较多
连续纤维增强 PEEK 复合材料	纤维含量相对较高、力学性能提升极为明显	存在明显各向异性、制件精度较低、成型效率低

多的 PEEK 树脂进行界面黏结,从而极大地限制了 CCF/PEEK 复合材料制件的纤维含量提升和制件性能改善,也就难以保证航空航天特征结构件的超高强度需求。针对该问题,可通过研发高性能的碳纤维上浆剂来解决。该上浆剂一方面应该具有较好的流动性,满足碳纤维束地充分浸渍需求;另一方面应和碳纤维及 PEEK 材料间具有良好的相容性,从而有助于不同材料间形成高性能的结合界面。

PEEK 作为一种半晶态聚合物,理论上可通过调节热过程实现从无定形态到接近 50% 结晶度的调控。碳纤维作为一种具有优异热传导性能的增强体,其不同的排布方向、不同的纤维含量都会影响 PEEK 基体成型的热过程,从而影响 PEEK 结晶形态及结晶度。针对碳纤维增强 PEEK 复合材料挤出成型,如何系统地建立该工艺下的复杂热传导模型,使其能依据结晶度需求快速设计制件的工艺参数,或者依据同一制件不同区域的个性化需求实现可控的多功能梯度制造,这也是该技术目前面临的巨大的挑战。针对此,可通过研究非等温条件下复合材料制件的基

本工艺参数、结晶特征和力学性能的动态映射关系,结合有限元仿真,建立适用于材料挤出成型工艺的热传导及性能预测模型,用于复合材料一体化制造过程中的分区域性能调控。

结论

材料挤出成型技术可用于一体化制备具有复杂结构的高性能纤维增强 PEEK 复合材料构件。现有研究针对不同纤维增强 PEEK 复合材料内部的多层级缺陷进行了工艺优化,并实现了其综合性能不同程度上的提高,尤其是 CCF/PEEK 复合材料,其抗弯强度已达到 480MPa,明显优于各类铝合金制件。随着纤维增强 PEEK 复合材料挤出成型技术的深入研究和不断发展,通过结合挤出成型技术灵活的制造特征、可控的 PEEK 结晶性能以及纤维的多样化分布设计可实现构件的多功能一体化制造,从而为同时满足航空航天多样的极端环境需求、复杂结构低成本的制造需求以及轻质高强和低功耗的应用需求提供可靠的技术保障。

未来,CCF/PEEK 复合材料挤出成型将重点围绕以下 4 个方面进一步开展研究。

(1) 材料方面:适用于 CCF/PEEK 复合材料挤出成型的高流动性上浆剂研发。

(2) 工艺方面:通过 Z 向纤维分布降低各向异性的挤出成型工艺研究。

(3) 设备方面:高精度高速度挤出成型设备研发。

(4) 应用方面:航空航天等领域典型结构件的一体化成型及应用评估。

参考文献

- [1] VAEZI M, YANG S. Extrusion-based additive manufacturing of PEEK for biomedical applications[J]. Virtual and Physical Prototyping, 2015, 10(3): 1-13.
- [2] AMANAT N, CHAMINADE C, GRACE J, et al. Transmission laser welding of amorphous and semi-crystalline poly-ether-ether-ketone for applications in the medical device industry[J]. Materials & Design, 2010, 31(10): 4823-4830.
- [3] 林有希,高诚辉.碳纤维增强聚醚醚酮复合材料的研究及应用[J].塑料工业, 2005, 33(10): 5-8, 20.
- LIN Youxi, GAO Chenghui. Review of research and application of CF/PEEK

composite[J]. China Plastics Industry, 2005, 33(10): 5–8, 20.

[4] WILLIAMS D F, MCNAMARA A, TURNER R M. Potential of polyetheretherketone (PEEK) and carbon-fibre-reinforced PEEK in medical applications[J]. Journal of Materials Science Letters, 1987, 6(2): 188–190.

[5] 钟明强, 益小苏, JACOBS O. 短碳纤维增强注塑聚醚醚酮复合材料微观结构与力学性能研究[J]. 复合材料学报, 2002, 19(1): 12–16.

ZHONG Mingqiang, YI Xiaosu, JACOBS O. Microstructure and mechanical property of short carbon fiber reinforced injection-moulded peek composites[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2002, 19(1): 12–16.

[6] YOON H, TAKAHASHI K. Mode I interlaminar fracture toughness of commingled carbon fibre/PEEK composites[J]. Journal of Materials Science, 1993, 28(7): 1849–1855.

[7] FUJIHARA K, HUANG Z M, RAMAKRISHNA S, et al. Influence of processing conditions on bending property of continuous carbon fiber reinforced PEEK composites[J]. Composites Science and Technology, 2004, 64(16): 2525–2534.

[8] 秦滢杰, 韩建平, 陈书华. 热塑性复合材料原位成型工艺及关键技术[J]. 宇航材料工艺, 2019, 49(1): 9–14.

QIN Yingjie, HAN Jianping, CHEN Shuhua. Key technology developments for in situ consolidation process of thermoplastic composites[J]. Aerospace Materials & Technology, 2019, 49(1): 9–14.

[9] YAN M, TIAN X, PENG G, et al. High temperature rheological behavior and sintering kinetics of CF/PEEK composites during selective laser sintering[J]. Composites Science and Technology, 2018, 165(8): 140–147.

[10] 汪洋, 叶春生, 黄树槐. 熔融沉积成型材料的研究与应用进展[J]. 塑料工业, 2005, 33(11): 4–6.

WANG Yang, YE Chunsheng, HUANG Shuhuai. Advance in study and application of material for fused deposition modeling[J]. China Plastics Industry, 2005, 33(11): 4–6.

[11] TORRES J, COTELO J, KARL J, et al. Mechanical property optimization of FDM PLA in shear with multiple objectives[J]. JOM, 2015, 67(5): 1183–1193.

[12] MONTERO M, ROUNDY S, ODELL D, et al. Material characterization of fused deposition modeling (FDM) ABS by designed experiments[J]. Society of Manufacturing Engineers, 2001, 10(13552540210441166).

[13] SINGH R, SINGH S. Development of nylon based FDM filament for rapid tooling application[J]. Journal of The Institution of Engineers (India): Series C, 2014, 95(2): 103–108.

[14] ZHAO F, LI D, JIN Z. Preliminary investigation of poly-ether-ether-ketone based on fused deposition modeling for medical applications[J]. Materials, 2018, 11(2): 288.

[15] DUDEK P. FDM 3D printing technology in manufacturing composite elements[J]. Archives of metallurgy and materials, 2013, 58(4): 1415–1418.

[16] LI L M, SUN Q, BELLEHUMEUR C, et al. Composite modeling and analysis for fabrication of FDM prototypes with locally controlled properties[J]. Journal of Manufacturing Processes, 2002, 4(2): 129–141.

[17] NIKZAD M, MASOOD S H, SBARSKI I. Thermo-mechanical properties of a highly filled polymeric composites for fused deposition modeling[J]. Materials & Design, 2011, 32(6): 3448–3456.

[18] NING F, CONG W, QIU J, et al. Additive manufacturing of carbon fiber reinforced thermoplastic composites using fused deposition modeling[J]. Composites Part B: Engineering, 2015, 80: 369–378.

[19] DICKSON A N, BARRY J N, MCDONNELL K A, et al. Fabrication of continuous carbon, glass and Kevlar fibre reinforced polymer composites using additive manufacturing[J]. Additive Manufacturing, 2017, 16: 146–152.

[20] DAVIES R, SHYNG Y T, WANG Y, et al. Extrusion deposition of carbon nanotubes (CNT)/poly ether ether ketone (PEEK)[C]//20th International Conference on Composite

Materials, 2015.

[21] HU Q X, LI W Y, ZHANG H G, et al. Research into topology optimization and the FDM method for a space cracked membrane[J]. Acta Astronautica, 2017, 136: 443–449.

[22] HAN X T, YANG D, YANG C C, et al. Carbon fiber reinforced PEEK composites based on 3D-printing technology for orthopedic and dental applications[J]. Journal of Clinical Medicine, 2019, 8(2): 240.

[23] STEPASHKIN A A, CHUKOV D, SENATOV F S, et al. 3D-printed PEEK-carbon fiber (CF) composites: Structure and thermal properties[J]. Composites Science and Technology, 2018, 164: 319–326.

[24] LI Q S, ZHAO W, LI Y X, et al. Flexural properties and fracture behavior of CF/PEEK in orthogonal building orientation by FDM: Microstructure and mechanism[J]. Polymers, 2019, 11(4): 656.

[25] TIAN X Y, LIU T F, YANG C C, et al. Interface and performance of 3D printed continuous carbon fiber reinforced PLA composites[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2016, 88: 198–205.

[26] LUO M, TIAN X Y, SHANG J F, et al. Impregnation and interlayer bonding behaviours of 3D-printed continuous carbon-fiber-reinforced poly-ether-ether-ketone composites[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2019, 121: 130–138.

[27] LUO M, TIAN X Y, SHANG J F, et al. Bi-scale interfacial bond behaviors of CCF/PEEK composites by plasma-laser cooperatively assisted 3D printing process[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2020, 131: 105812.

[28] BERRETTA S, DAVIES R, SHYNG Y T, et al. Fused deposition modelling of high temperature polymers: exploring CNT PEEK composites[J]. Polymer Testing, 2017, 63: 251–262.

通讯作者: 田小永, 博士、教授, 主要研究方向为多功能复合材料的增材制造及应用, E-mail: leoxyt@mail.xjtu.edu.cn.

Status and Challenge of Materials Extrusion Additive Manufacturing for High-Performance Fiber Reinforced Poly (ether ether ketone) Composites

LUO Meng¹, TIAN Xiaoyong¹, SHANG Junfan¹, Qin Yingjie^{1,2}, ZHU Weijun³, LI Dichen¹, CHEN Yi⁴

(1. State Key Laboratory for Manufacturing System Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

2. Xi'an Aerospace Composite Material Research Institute, Xi'an 710025, China;

3. School of Mechanical Engineering and Automation, Beihang University, Beijing 100191, China;

4. Beijing Spacecrafts Manufacturing Factory, Beijing 100094, China)

[ABSTRACT] Materials extrusion as a classical additive manufacturing process can melt, extrude and fabricate the thermoplastic components or their composites layer by layer. It has the advantages of no-molding, ability to form complex structure and low cost, thus to be used in medical, aerospace, and automobile fields. Poly (ether ether ketone), as a kind of semi-crystalline thermoplastic polymer, has many excellent characteristics such as light weight, high strength, good thermal stability, and corrosion resistance. Its components can be fabricated by materials extrusion technology in low cost. In this paper, the development status of the materials extrusion of fiber reinforced poly (ether ether ketone) composites were introduced. The mechanism of the process, development process of the technology and detailed performance comparison were respectively discussed. In the end, the challenges of the fiber reinforced poly (ether ether ketone) composites extrusion for further development were analyzed.

Keywords: Additive manufacturing; Materials extrusion; Poly (ether ether ketone); Composites; Fiber

(责编 大漠)

(上接第38页)

A Review on Autoclave Process Simulation for Composites Manufacturing

XU Qiang

(State Key Laboratory of Fluid Power and Mechatronic System, School of Mechanical Engineering,
Zhejiang University, Hangzhou 310027, China)

[ABSTRACT] Process simulation plays an important role on modelling the fabrication process for manufacturing large geometrically structural components. In the western developed countries, simulation technology has widely used in manufacturing of the primary composite structures. In past ten years, we have obtained stage achievement on studying the modeling of composites manufacturing processes, but their use remains still limited due to the lack of fully validated modelling tools in contrast to the advanced international level. Hence, in this study, the autoclave process simulation for composites manufacturing is reviewed in detail. The requirements for the aerospace of the process simulation are presented by our previous works on the autoclave process simulations. The research efforts in the future are probably going to focus on the development of the autoclave process simulation during the composites manufacturing process.

Keywords: Composite component; Layup tooling design; Autoclave process simulation; Curing deformation

(责编 大漠)