

ẢNH HƯỞNG KÍCH THƯỚC HẠT OXID NHÔM ĐẾN TÍNH CHẤT CƠ HỌC VÀ HÌNH THÁI CẤU TRÚC CỦA VẬT LIỆU COMPOSITE NHỰA PHENOLIC GIA CƯỜNG SỢI THỦY TINH

Đến tòa soạn: 21-05-2025

Nguyễn Hữu Đạt¹, Trần Hữu Trung¹, Mai Đức Huỳnh¹, Trần Thị Mai¹, Nguyễn Thị Thu Trang¹,
Đỗ Văn Công¹, Nguyễn Tiến Minh¹, Lương Như Hải², Nguyễn Tuấn Hồng², Nguyễn Văn Thao²,
Nguyễn Vũ Giang^{1*}

¹Viện Khoa học vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

²Trung tâm Nghiên cứu và phát triển Công nghệ cao, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

*E-mail: vugiang.lit@gmail.com

SUMMARY

EFFECT OF ALUMINA PARTICLE SIZE ON THE MECHANICAL PROPERTIES AND MORPHOLOGY OF PHENOLIC/GLASS FIBER REINFORCED COMPOSITES

In this study investigated the effects of nano-sized ($n\text{Al}_2\text{O}_3$) and micro-sized ($\mu\text{Al}_2\text{O}_3$) aluminum oxide particles on the mechanical properties and morphology of phenolic resin-based glass fiber-reinforced composites were investigated. Experimental results indicated that both types of additives enhanced thermal conductivity and reduced material porosity after curing. Additionally, mechanical properties such as tensile strength, tensile modulus, flexural strength, fiber-matrix interfacial strength, and interlaminar shear strength were all improved. Notably, the composite containing 2% $n\text{Al}_2\text{O}_3$ exhibited the highest tensile strength (324.6 MPa), while 6% $n\text{Al}_2\text{O}_3$ yielded the greatest fiber-matrix bond strength (6.21 MPa), both outperforming $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$ -modified samples. In contrast, the incorporated $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$ composites showed superior enhancements in tensile modulus, flexural strength, and especially interlaminar shear strength, with a peak value reaching up to 35.7 MPa, a 182% increase compared to the unmodified sample. These findings highlighted the potential of utilizing alumina particles with a various size to effectively enhance the mechanical performance of phenolic resin-based fiber-reinforced composites.

Keywords: Polyme composite, aluminum oxide particles, nano Al_2O_3 , micro Al_2O_3

1. MỞ ĐẦU

Vật liệu composite nhẹ đang thu hút ngày càng nhiều sự quan tâm do có tỷ trọng thấp hơn nhưng vẫn đảm bảo các tính chất cơ học tương đương hoặc được cải thiện so với các vật liệu truyền thống. Vật liệu này mang nhiều đặc tính nổi trội như độ bền riêng cao, khả năng chịu nhiệt tốt, chống bức xạ, độ bền môi, khả năng kháng mài mòn, bền hoá chất và độ bền cơ học tốt [1-3]. Đặc biệt, vật liệu này có thể đáp ứng được các điều kiện hoạt động trong môi trường khắc nghiệt ở áp lực và

hiệt độ rất cao ($>2700^\circ\text{C}$) trong thời gian ngắn hay chịu nhiệt độ cao trong thời gian dài như các ứng dụng đặc biệt trong lĩnh vực hàng không vũ trụ, vỏ thân máy bay, các bộ phận động cơ tên lửa [4-7]. Vật liệu nền cho các composite nhẹ có thể là kim loại, gốm và polyme. Vật liệu composite nền polyme có hai pha chính gồm pha nền là polyme và pha gia cường dạng sợi ngắn hoặc dài, các hạt có kích thước từ vài milimet đến nanomet [8]. Pha nền polyme có tác dụng liên kết cấu trúc/chất kết dính với pha gia cường,

truyền và phân bố đều tải trọng vào pha gia cường [8-10]. Pha nền polyme có thể là nhựa nhiệt dẻo hoặc nhựa nhiệt rắn. Đối với các ứng dụng đòi hỏi khả năng chịu nhiệt độ cao và rất cao, nhựa nhiệt rắn chiếm ưu thế lớn hơn so với nhựa nhiệt dẻo do đặc tính không nóng chảy ở nhiệt độ cao, không hoà tan trong dung môi sau khi chuyển sang trạng thái không gian 3 chiều (đóng rắn). Đặc biệt, ở điều kiện nhiệt độ cực cao, khi phần lớn các loại nhựa nền đều bị phân huỷ gây phá huỷ cấu trúc tổng thể của vật liệu polyme composite, nhựa phenol-formaldehyde (PF) có khả năng chịu nhiệt độ và chống xói mòn nhiệt rất tốt nhờ có chứa số lượng lớn cấu trúc vòng thơm, dẫn đến hiệu suất cacbon hoá cao và tạo rào cản nhiệt vượt trội [11-15]. Pha gia cường dạng sợi thường được sử dụng như sợi thủy tinh (GF), sợi cacbon (CF) sợi tự nhiên..., chúng hoạt động như thành phần chịu tải chính do có độ bền cơ học và mô đun cao hơn [9,10,16]. Cùng với chất độn gia cường dạng sợi, chất độn gia cường dạng hạt cũng có khả năng cải thiện đáng kể một số tính chất của vật liệu [12-15]. Đáng chú ý, nhiều nghiên cứu đã chỉ ra rằng các phụ gia khác nhau có khả năng cải thiện các tính chất khác nhau và kích thước của phụ gia thể hiện những hiệu ứng khác nhau. Nhiều công trình nghiên cứu sử dụng phụ gia oxit nhôm với kích thước micro và nano để gia cường cho vật liệu polyme composite cốt sợi cho thấy các hiệu quả khác nhau khi kích thước của hạt oxit nhôm khác nhau. Điều này thể hiện rõ nhất ở các composite sử dụng phụ gia oxit nhôm kích thước micro và nano ở các trạng thái đơn lẻ trong các nền nhựa nhiệt dẻo và nhựa nhiệt rắn. Điều thú vị là Seshanandan và các cộng sự đã chứng minh rằng sử dụng phụ gia Al_2O_3 kích thước nano cải thiện độ bền kéo, độ bền uốn và độ bền va đập của vật liệu, đồng thời, có sự xuất hiện hiệu ứng gia cường

cộng hưởng khi sử dụng nó và cốt sợi gia cường [17]. Tuy nhiên, khi hàm lượng chất gia cường vượt quá giá trị nhất định, khả năng cải thiện tính chất không được thể hiện rõ ràng, nghiêm trọng hơn, nó có thể gây suy giảm tính chất của hệ vật liệu [18-25]. Tuy nhiên, việc sử dụng đồng thời phụ gia kích thước micro và nano oxit nhôm trên nền nhựa phenol-formaldehyde chưa được quan tâm nghiên cứu. Các đặc trưng và hiệu ứng của chất độn gia cường oxit nhôm trên nền nhựa này cũng chưa được đề cập.

Nghiên cứu này tập trung làm sáng tỏ ảnh hưởng của oxit nhôm kích thước nano (nAl_2O_3) và micro (μAl_2O_3) đến các tính chất cơ lý của vật liệu polyme composite có pha nền là nhựa phenol-formaldehyde và pha gia cường là sợi thủy tinh S-glass dạng vải dệt (PF/GF).

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Nguyên vật liệu

Nhựa phenolic của hãng Resitan-Iran (mã hiệu RIL 1002) là nhựa phenolic dạng resol có độ nhớt tại 20 °C là 1100-1400 cP, khối lượng riêng 1,2 g/cm³. Vải dệt thủy tinh là sản phẩm thương mại của hãng Colan (Australia) có đường kính sợi 9 μm , định lượng vải (GSM- grams per square meter) là 130 g/m², độ dày 0,2 mm; Phụ gia oxit nhôm kích thước nano và micro là sản phẩm thương mại của hãng Sigma-Aldrich (USA).

Tính chất của phụ gia oxit nhôm kích thước nano và micro sử dụng được thống kê trên bảng 1 dưới đây.

Bảng 1. Tính chất của oxit nhôm kích thước nano và micro

Tính chất	Đơn vị	μAl_2O_3	nAl_2O_3
Độ tinh khiết	%	100	100
Kích thước hạt (SEM, DLS)		$>63 \mu m (\geq 72\%)$ $<63 \mu m (\leq 28\%)$	
Diện tích bề mặt	m ² /g		155,34

Tính chất	Đơn vị	$\mu\text{Al}_2\text{O}_3$	n Al_2O_3
riêng (SSA, đo bằng phương pháp BET)			
Khối lượng riêng (ASTM B311)	g/cm ³	3,94 – 3,97	
Mật độ biểu kiến (ASTM D1895)	g/L	950-1100	38-40

2.2. Chế tạo vật liệu composite

Nhựa nền được gia nhiệt đến 70 °C trong bình cầu 3 cổ, có lắp đặt nhiệt kế để kiểm soát nhiệt độ và được khuấy trộn ở tốc độ 400 vòng/phút trong 30 phút bằng máy khuấy polyme độ nhớt cao để phân tán phụ gia vào nhựa nền. Trong quá trình phân tán, cồn tuyệt đối được bổ sung vào để duy trì tỉ lệ nhựa/cồn 78/22. Khi phụ gia được phân tán đồng đều trong nhựa nền, hỗn hợp thu được được sử dụng để thấm ướt cho vải sợi thủy tinh, tạo thành bán thành phẩm prepreg.

Quá trình chế tạo prepreg được thực hiện theo các bước sau: Đầu tiên, ngâm cốt vải sợi gia cường trong dung dịch nhựa đã được phân tán phụ gia trong 2 giờ ở nhiệt độ 60 °C và áp suất chân không là -0,5 MPa nhằm loại bỏ bọt khí. Tiếp đó, nhiệt độ được giảm tự nhiên xuống nhiệt độ môi trường và sử dụng con lăn có áp lực 20 N/10 cm để loại bỏ nhựa dư trên bề mặt cốt sợi gia cường. Cuối cùng, vải sợi thủy tinh đã được thấm ướt được sấy ở 75 °C trong 2 giờ để bay hơi dung môi hòa tan.

Vật liệu composite được chế tạo từ bán thành phẩm prepreg trên thiết bị ép áp lực có gia nhiệt. Tấm vật liệu được trải qua 3 giai đoạn lưu hóa. Giai đoạn 1: nhiệt độ ép 100 °C, áp lực ép 25 MPa trong 60 phút. Giai đoạn 2: nhiệt độ được tăng lên 165 °C, áp lực ép 100 MPa và duy trì áp lực ép trong 150 phút. Cuối cùng, sau khi nhựa đã khâu mạch hoàn toàn, giai đoạn 3 được tiến hành với nhiệt độ 120 °C, áp lực ép duy trì 75 MPa trong thời gian 150 phút.

2.3. Phương pháp nghiên cứu

Phương pháp phân tích nhiệt quét vi sai DSC được thực hiện trên thiết bị nhiệt lượng quét vi sai DSC 204F1 Phonex, Netzsch – Đức, 2015

Hình thái cấu trúc bề mặt vật liệu được khảo sát bằng kính hiển vi điện tử phát xạ trường (FESEM) trên máy HITACHI S-4800.

Các tính chất cơ lý như độ bền kéo đứt theo tiêu chuẩn ASTM D638, độ bền uốn theo tiêu chuẩn ASTM D790, độ bền cắt giữa các lớp (ASTM D3846) được xác định bằng thiết bị thử nghiệm cơ lý vật liệu đa năng SHIMADZU (Nhật Bản).

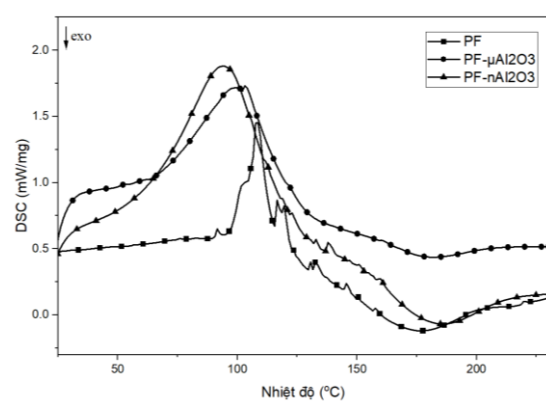
Các phép phân tích và thử nghiệm đánh giá được thực hiện tại Viện Khoa học Vật liệu.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Ảnh hưởng của kích thước hạt oxit nhôm đến tính chất của nhựa nền

3.1.1. Ảnh hưởng của kích thước hạt oxit nhôm đến khả năng khâu mạch nhựa nền

Hình 1 trình bày giản đồ phân tích nhiệt quét vi sai của nhựa nền PF ban đầu và sau khi được phân tán bởi phụ gia oxit nhôm kích thước nano (PF-n Al_2O_3) và kích thước micro (PF- $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$) với hàm lượng oxit nhôm sử dụng là 4%.



Hình 1. Giản đồ DSC của PF, PF-n Al_2O_3 , PF- $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$

Có thể nhận thấy phụ gia oxit nhôm kích thước nano và micro có ảnh hưởng đến tính chất nhiệt của nhựa nền ban đầu. Giải đồ DSC của mẫu nhựa PF có nhiều đỉnh thu nhiệt với cường độ đỉnh nhỏ trong khoảng nhiệt độ từ 100 lên 145 °C, trong đó, đỉnh thu nhiệt lớn nhất ở 108,4 °C. Đỉnh thu nhiệt của mẫu chứa $n\text{Al}_2\text{O}_3$ ở nhiệt độ thấp nhất 94,1 °C, thấp hơn đáng kể so với của mẫu chứa $m\text{Al}_2\text{O}_3$ xảy ra ở 103,2 °C. Nguyên nhân có thể giải thích do tăng độ truyền nhiệt và tăng nhiệt dung riêng của nhựa nền khi có mặt của oxit nhôm, khiến cho các quá trình biến đổi vật lý và phản ứng hóa học xảy ra nhanh hơn. Ở khoảng nhiệt độ 90-120 °C, quá trình thu nhiệt là chủ yếu do cần năng lượng để bay hơi dung môi và nước hấp phụ trong các nguyên liệu ban đầu. Phản ứng trùng ngưng của *p*-hydroxymethyl với hydrogen hoạt động ở vị trí para của vòng phenol cũng bắt đầu xảy ra trong giai đoạn này, tuy nhiên, quá trình phản ứng xảy ra chậm và không chiếm ưu thế [26]. Do đó, nhiệt lượng tỏa ra do phản ứng này không đáng kể so với nhiệt lượng thu của quá trình bay hơi dung môi và nước của toàn hệ. Nhờ tăng độ hấp phụ nhiệt và khả năng truyền nhiệt, dung môi và nước được sinh ra cũng bốc bay mạnh hơn. Mức độ phản ứng chậm hơn và khả năng thu nhiệt của PF thấp hơn so với các hỗn hợp composite, do vậy nước và dung môi thoát ra chậm hơn. Đồng thời, quá trình khô mạch và đóng rắn dần xảy ra khi nhiệt độ của hệ tiếp tục được tăng lên. Quá trình đóng rắn polyme xảy ra, trong khi các dung môi và hơi nước chưa kịp thoát ra sẽ hình thành các túi khí bên trong vật liệu, vì vậy làm vật liệu trở nên xốp hơn. Quá trình khô mạch của PF và các composite chứa $m\text{Al}_2\text{O}_3$ và $n\text{Al}_2\text{O}_3$ lần lượt xảy ra với đỉnh tỏa nhiệt ở 177,4 °C, 181,7 °C và 186,1 °C. Điều này có lẽ do các hạt oxit nhôm có kích thước nhỏ hơn, dễ phân tán vào sâu bên trong các

vật liệu, chúng tăng hấp phụ nhiệt và do đó, thúc đẩy các phản ứng đóng rắn xảy ra nhanh hơn và hoàn toàn hơn.

Bảng 2 thống kê các đặc trưng tính chất vật lý của nhựa nền sau khi đóng rắn như khối lượng riêng lý thuyết, khối lượng riêng thực nghiệm, độ rỗng của vật liệu.

Bảng 2. Hàm lượng rỗng của nhựa nền PF, $\text{PF-}2n\text{Al}_2\text{O}_3$ và $\text{PF-}2\mu\text{Al}_2\text{O}_3$

Mẫu	Khối lượng riêng lý thuyết	Khối lượng riêng thực tế	Độ rỗng
PF	1,23	1,192	3,089
PF-2n Al_2O_3	1,244	1,231	1,045
PF-4n Al_2O_3	1,262	1,245	1,347
PF-6n Al_2O_3	1,28	1,257	1,797
PF-2 μ Al_2O_3	1,244	1,229	1,206
PF-4 μ Al_2O_3	1,262	1,248	1,109
PF-6 μ Al_2O_3	1,28	1,264	1,250

Có thể nhận thấy PF không gia cường có khối lượng riêng thực tế thấp hơn đáng kể so với khối lượng riêng lý thuyết, dẫn đến độ rỗng cao nhất (3,089%). Như đã đề cập ở trên, quá trình hình thành các túi khí do dung môi và nước (sản phẩm của quá trình trùng ngưng) bay hơi là nguyên nhân tạo ra độ rỗng ở PF.

Khi thêm $n\text{Al}_2\text{O}_3$ hay $m\text{Al}_2\text{O}_3$ (còn gọi là $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$) vào hệ nhựa, độ rỗng của vật liệu đáng kể so với nhựa PF ban đầu. Điều này do hai chất gia cường này có khả năng tăng khả năng hấp phụ và truyền nhiệt, dẫn đến tăng khả năng bốc bay hơi nước và dung môi, từ đó giảm khả năng hình thành các túi khí trong PF. Ngược lại, do hơi nước và dung môi thoát hơi chậm, nằm lại trong vật liệu và hình thành các túi khí khi vật liệu được đóng rắn, chúng làm tăng độ rỗng của PF so với các mẫu composite. Điều thú vị là tăng hàm lượng

phụ gia nano hay micro từ 2% lên 6%, xu hướng chung là tăng độ rỗng của vật liệu. Điều này do oxit nhôm có thể thúc đẩy khâu mạch thông qua việc cung cấp nhiệt cho các phản ứng ngưng tụ, khả năng này tăng lên khi hàm lượng oxit nhôm lớn hơn, vì thế, hơi nước thoát ra nhiều hơn, làm tăng độ xốp, rỗng của vật liệu. So với các mẫu chứa mAl_2O_3 , các mẫu chứa nAl_2O_3 có độ rỗng lớn hơn nhờ khả năng phân tán, hấp phụ và truyền nhiệt tốt hơn, tạo thuận lợi hơn cho các phản ứng ngưng tụ xảy ra hoàn toàn hơn, nhờ vậy hơi nước thoát ra nhanh hơn với lượng nhiều hơn. Rõ ràng, việc gia cường nhựa phenol (PF) bằng hạt Al_2O_3 có ảnh hưởng rõ rệt đến cấu trúc đặc khối của vật liệu. Hạt nano có khả năng làm giảm độ rỗng hiệu quả hơn ở hàm lượng thấp, nhưng có thể bị kết tụ ở hàm lượng cao. Trong khi đó, phụ gia oxit nhôm kích thước micro cũng cho thấy hiệu quả cải thiện độ rỗng một cách đáng kể khi so sánh với nhựa PF ban đầu. Tuy nhiên, giá trị độ rỗng của vật liệu này không thay đổi nhiều khi hàm lượng mAl_2O_3 tăng đến 6%. Thậm chí, độ rỗng đạt giá trị thấp nhất (1,109%) tại hàm lượng mAl_2O_3 4% cho thấy khả năng cải thiện độ rỗng tốt nhất.

3.2. Ảnh hưởng của kích thước hạt oxit nhôm đến tính chất cơ học của vật liệu polyme composite PF/sợi thủy tinh

Tính chất độ bền kéo

Bảng 3 thống kê kết quả về đặc trưng tính chất kéo của polyme composite PF/sợi thủy tinh (GF) có mặt chất gia cường hạt oxit nhôm kích thước nano và micro ở các hàm lượng 0, 2, 4, 6 % khối lượng.

Có thể nhận thấy khi thêm chất gia cường, tính chất kéo của vật liệu đều có sự cải thiện. Độ bền kéo của vật liệu được gia tăng từ 318,26 MPa lên 324,6 MPa khi đưa thêm 2% nAl_2O_3 , sau đó giảm nhẹ khi tiếp tục tăng hàm lượng nAl_2O_3 . Khác với nAl_2O_3 ,

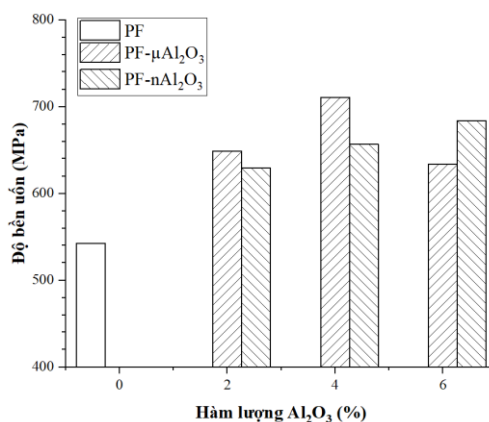
mẫu chứa μAl_2O_3 thể hiện khả năng kéo tốt nhất có hàm lượng là 4%. Các kết quả mô đun kéo cũng cho xu hướng tương tự. Thậm chí, mô đun kéo của các mẫu μAl_2O_3 cao hơn đáng kể so với các mẫu nAl_2O_3 . Các kết quả này cho thấy chất gia cường ở kích thước hạt khác nhau mang lại hiệu ứng cải thiện tính chất khác nhau. Oxit nhôm kích thước nano cải thiện độ bền kéo đứt, trong khi phụ gia kích thước micro cải thiện mô đun kéo cho vật liệu.

Bảng 3. Độ bền kéo vật liệu polyme composite PF/GF và PF/GF- Al_2O_3

Mẫu	Độ bền kéo (MPa)	Mô đun kéo (GPa)	Độ giãn dài khi đứt (%)
PF/GF	318,26	18,54	5,4
PF/GF- $2nAl_2O_3$	324,6	19,21	4,12
PF/GF- $4nAl_2O_3$	323,1	19,22	4,04
PF/GF- $6nAl_2O_3$	321,4	22,4	3,89
PF/GF- $2\mu Al_2O_3$	320,6	19,36	2,86
PF/GF- $4\mu Al_2O_3$	324,2	21,9	2,16
PF/GF- $6\mu Al_2O_3$	302,7	22,6	2,07

Tính chất độ bền uốn

Độ bền uốn của polyme composite PF/GF với các hàm lượng oxi nhôm khác nhau được thể hiện trên hình 2.



Hình 2. Độ bền uốn vật liệu polyme composite PF/GF và PF/GF- Al_2O_3

Kết quả cho thấy việc đưa thêm hạt oxid nhôm ở cả hai dạng kích thước nano và micro có ảnh hưởng rõ rệt đến khả năng chịu uốn của vật liệu. Độ bền uốn của mẫu PF/GF ban đầu là 542,60 MPa có sự gia tăng đáng kể khi có mặt Al_2O_3 . Khi đưa hạt nano- Al_2O_3 ở các hàm lượng khác nhau (2%, 4%, và 6%), độ bền uốn của vật liệu lần lượt đạt 629,42 MPa, 656,55 MPa và 683,68 MPa, tương ứng tăng 16,0%, 21,0% và 26,0% so với mẫu gốc. Đối với mẫu có thêm hạt $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$, độ bền uốn cũng được cải thiện nhưng mức độ khác nhau tùy theo hàm lượng. Mẫu PF/GF-2 $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$ có độ bền uốn đạt 648,95 MPa (tăng 19,6%), PF/GF-4 $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$ đạt 710,81 MPa (tăng mạnh nhất, 31,0%), trong khi mẫu PF/GF-6 $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$ chỉ đạt 633,76 MPa (tăng 16,8%). Kết quả này chỉ ra rằng đưa 4% micro- Al_2O_3 tăng cường tối ưu độ bền uốn. Ở hàm lượng cao hơn 6%, hiện tượng suy giảm hiệu quả phân tán xảy ra do sự kết tụ các hạt, gây ra các điểm yếu cục bộ trong vật liệu, từ đó làm giảm khả năng chịu uốn.

Thử nghiệm độ bền liên kết sợi nhựa và độ bền cắt giữa các lớp

Bảng 4 thống kê kết quả độ bền liên kết giữa sợi/nhựa nền và thử nghiệm độ bền cắt lớp theo tiêu chuẩn ASTM D3846.

Bảng 4. Kết quả thử nghiệm độ bền liên kết sợi nhựa và độ bền cắt giữa các lớp

	Độ bền liên kết sợi nhựa (MPa)	Độ bền cắt giữa các lớp (MPa)
PF/GF	3,72	14,1
PF/GF-2n Al_2O_3	5,56	18,4
PF/GF-4n Al_2O_3	6,13	20,6
PF/GF-6nAl_2O_3	6,21	24,3
PF/GF-2 $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$	4,26	19,8
PF/GF-4$\mu\text{Al}_2\text{O}_3$	4,54	25,7
PF/GF-6 $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$	4,11	23,6

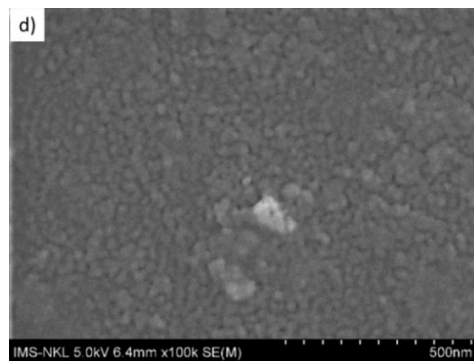
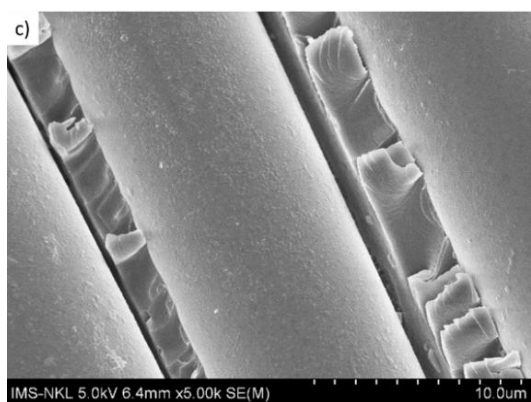
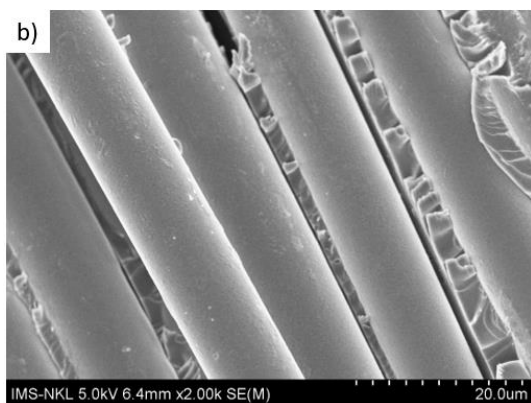
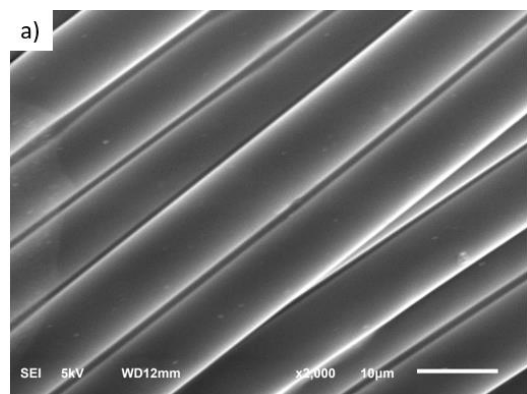
Kết quả bảng 4 cho thấy, việc đưa vào các hạt Al_2O_3 cả ở kích thước nano và micro đều cải thiện đáng kể độ bền liên kết giữa nhựa phenolic và sợi thủy tinh. Mẫu PF/GF có độ bền liên kết sợi–nhựa là 3,72 MPa và độ bền cắt giữa các lớp là 14,1 MPa. Khi thêm 2% hạt nano Al_2O_3 , độ bền liên kết tăng lên 5,56 MPa và tiếp tục đạt đỉnh ở mức 6,21 MPa với hàm lượng 6%, tương ứng với độ bền cắt tăng từ 18,4 MPa lên 24,3 MPa. Các kết quả về độ bền cắt giữa các lớp còn cho thấy hiệu ứng gia cường nổi bật hơn. Giá trị độ bền cắt tăng mạnh từ 14,1 MPa ở mẫu PF lên 19,8 MPa (tăng 40%) ở mẫu PF/GF-2 $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$, đạt đỉnh tại 25,7 MPa (tăng 82%) với 4% $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$, và giữ ở mức cao 23,6 MPa (tăng 67%) với 6% $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$. Điều này chứng tỏ hạt $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$ có vai trò tích cực trong việc gia tăng khả năng chống trượt và cản trở sự phát triển vết nứt giữa các lớp, nhờ vào cơ chế tiêu tán năng lượng tại ranh giới nhựa–hạt và cơ chế khóa vật lý khi các hạt oxid nhôm kích thước micro có độ cứng cao, chúng đan xen vào giữa các điểm giao nhau của sợi nhờ đó cải thiện vượt trội khả năng trượt tách lớp của vật liệu PF/GF.

Hình thái cấu trúc của vật liệu polyme composite PF/sợi thủy tinh

Hình thái cấu trúc của sợi sau khi thử nghiệm độ bền liên kết sợi nhựa được thể hiện trên hình 3.

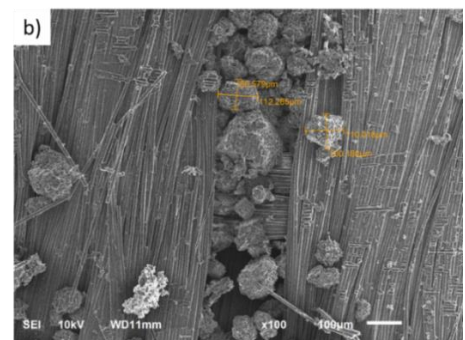
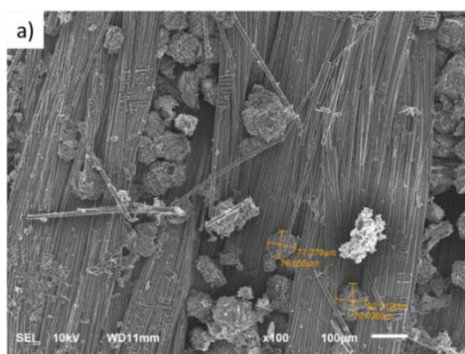
Hình 3a cho thấy cấu trúc của sợi sau khi thử nghiệm lực liên kết giữa sợi và nhựa nền. Sau khi được rút ra khỏi nhựa nền, bề mặt sợi trơn nhẵn với đường kính trong khoảng 9-9,3 μm . Ngược lại, bề mặt sợi trở nên gồ ghề và có những mảng nhựa vẫn liên kết trên bề mặt sợi khi đưa oxid nhôm vào vật liệu PF/GF. Điều này được thấy rõ ràng nhất ở mẫu sử dụng phụ gia oxid nhôm kích thước nano. Đường kính sợi cũng tăng lên khoảng 9,7-10 μm . Khi tăng độ phóng đại lên x5000 và x100.000

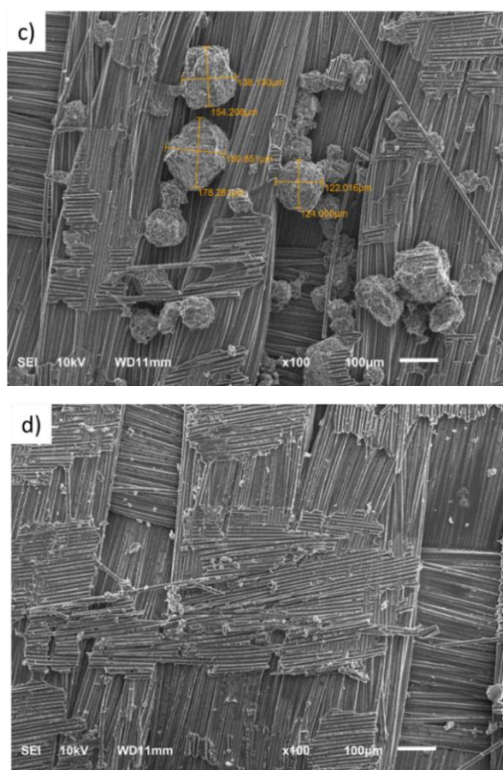
(Hình 3c và 3d), bề mặt sợi được bao bọc một lớp oxit nhôm có kích thước nằm trong khoảng 17-64 nm. Kết hợp sự tăng cao của lực liên kết giữa nhựa nền và sợi (như đề cập ở phần trước) cùng với hình ảnh SEM của sợi sau khi rút khỏi nhựa nền, một giả thuyết được đề xuất là khi có sự xuất hiện của phụ gia nano oxit nhôm, tương tác của nhựa nền và sợi được cải thiện do các hiệu ứng bề mặt của các hạt nano oxit nhôm.



Hình 3. Hình thái cấu trúc a) mẫu PF/GF; b) mẫu sau khi thử lực liên kết (pull-out); c) mẫu PF/GF- $n\text{Al}_2\text{O}_3$ độ phóng đại x5000 và d) mẫu PF/GF- $n\text{Al}_2\text{O}_3$ độ phóng đại x10000

Để làm rõ khả năng cải thiện đáng kể độ bền cắt giữa các lớp của các mẫu chứa hạt $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$, hình thái cấu trúc của vật liệu PF/GF- $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$ sau thử nghiệm độ bền cắt giữa các lớp được chụp lại và phân tích. Ảnh hiển vi điện tử quét SEM của chúng được thể hiện ở hình 4. Có thể nhận thấy các hạt $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$ có xu hướng tụ lại tại các điểm giao nhau giữa các sợi dệt và hoạt động như một mỏ neo vật lý, cản trở sự dịch chuyển của các lớp dưới tác động bên ngoài, nhờ đó cải thiện các tính chất cơ học của vật liệu PF/GF- $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$.





Hình 4. Ảnh SEM bề mặt cắt lớp của a) PF/GF- $2\mu\text{Al}_2\text{O}_3$, b) PF/GF- $4\mu\text{Al}_2\text{O}_3$, c) PF/GF- $2\mu\text{Al}_2\text{O}_3$, d) PF/GF sau thử nghiệm độ bền cắt giữa các lớp

KẾT LUẬN

Từ các kết quả nghiên cứu thu được, có thể rút ra một số kết luận sau:

Sử dụng hạt phụ gia Al_2O_3 kích thước nano và micro làm tăng khả năng truyền nhiệt, hấp phụ nhiệt và giảm độ rỗng của vật liệu sau khi đóng rắn do khả năng chuyển dịch các phản ứng thu nhiệt xuống vùng nhiệt độ thấp hơn, tăng khả năng bay hơi trước khi quá trình gel hóa và đóng rắn xảy ra.

Việc sử dụng phụ gia nano và micro đều cải thiện các tính chất cơ học của vật liệu như độ bền kéo, mô đun kéo, độ bền uốn, độ bền liên kết giữa sợi và nhựa, độ bền cắt giữa các lớp.

Đối với mẫu sử dụng phụ gia $n\text{Al}_2\text{O}_3$ tại các hàm lượng tối ưu, độ bền kéo đạt 324,6 MPa ở hàm lượng 2% $n\text{Al}_2\text{O}_3$, độ bền liên kết sợi-nhựa đạt cao nhất là 6,21

MPa tại hàm lượng 6%. Các kết quả này cao hơn khi so sánh với mẫu tối ưu sử dụng $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$. Ngược lại, đối với các mẫu sử dụng $\mu\text{Al}_2\text{O}_3$ cho thấy hiệu quả rõ rệt đối với mô đun kéo, độ bền uốn và đặc biệt là độ bền cắt giữa các lớp đạt 35,7 MPa tăng 182% so với mẫu không có oxit nhôm.

Lời cảm ơn: Nhóm tác giả cảm ơn Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam đã cấp kinh phí để thực hiện Hợp phần “Nghiên cứu vật liệu polyme composite đặc biệt ứng dụng chế tạo cụm loa phụt động cơ phóng” mã số: TĐANQP.01/23-25, thuộc Đề án Trọng điểm cấp Viện Hàn lâm KHCNVN “Nghiên cứu phát triển công nghệ và chế tạo vật liệu đặc chủng phục vụ quốc phòng giai đoạn 2023-2025”

Cam kết: Chúng tôi cam đoan đây là công trình của nhóm nghiên cứu và chưa gửi đăng nội dung này ở bất kỳ tạp chí nào.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Suchart Siengchin, (2023). A review on lightweight materials for defence applications: Present and future developments. *Defence Technology*, **24**, 1-17.
- [2] Bhatnagar, A. (Ed.). (2016). Lightweight ballistic composites: military and law-enforcement applications. Woodhead Publishing.
- [3] Sharma, S. & Logapperumal, Sowtharya & Kar, Kamal, (2017). Polymer-Based Composite Structures: *Processing and Applications*, 1-36.
- [4] Joshi, M, and U. Chatterjee, (2016). Polymer nanocomposite: an advanced material for aerospace applications. *Advanced composite materials for aerospace engineering*. Woodhead Publishing, 241-264.
- [5] Kumar, Narendra & Dixit, Ambesh. (2019). Nanotechnology for Defence Applications.

- [6] Boguszewicz, Christina, et al, (2021). The fourth industrial revolution-cyberspace mental wellbeing: Harnessing science & technology for humanity. *Global foundation for cyber studies and research*.
- [7] Kharat, D. & Harries, Muthurajan & Praveenkumar, B., (2006). Present and Futuristic Military Applications of Nanodevices. Synthesis and Reactivity in Inorganic Metal-organic and Nano-metal Chemistry. *SYNTH REACT INORG MET-ORG NAN*, **36**, 231-235.
- [8] Wang R.-M., Zheng S.-R., and Zheng Y.-P, (2011). Introduction to polymer matrix composites. *Polymer Matrix Composites and Technology*, 1–548.
- [9] Kriti, Sujata Kumari, and Akarsh Verma, (2024). Synthesis and Applications of Different Polymer Composites. *Hybrid Composite Materials: Experimental and Theoretical Analysis*, 1-44.
- [10] Kumar V. V., Balaganesan G., Lee J. K. Y., Neisiany R. E., Surendran S., and Ramakrishna S, (2019). A review of recent advances in nanoengineered polymer composites. *Polymers*. **11**(4).
- [11] Bijan K.Miremadi et al, (1998). A hydrogen selective gas sensor from highly oriented films of carbon, obtained by fracturing charcoal. *Sensors and Actuators B: Chemical*, **46**, 30-34
- [12] M. Kakunuri et al, (2018). Resorcinol-formaldehyde derived carbon xerogels: A promising anode material for lithium-ion battery. *Journal of Materials Research*, **33**, 1074–1087
- [13] Z. Jingeng et al, (2009). Structural evolution in the graphitization process of activated carbon by high-pressure sintering. *Carbon* **47**, 744-751
- [14] Xiaoming Chen et al, (2017). Robot needle-punching for manufacturing composite preforms. *Robotics and Computer-Integrated Manufacturing* **000**, 1–8
- [15] AR Bahramanian et al, (2006). Ablation and thermal degradation behavior of a composite based on resol type phenolic resin: process modeling and experimental. *Polymer* **47**, 3661-3673.
- [16] Matthews F. L. and Rawlings R. D., (1999). Polymer-matrix composites, Composite Materials. *Woodhead Publishing*, 168–205.
- [17] Seshanandan, G., Ravindran, D., & Sornakumar, T., (2015). Effect of Nano Aluminum Oxide Fillers on the Properties of FRP Polymer Matrix Composites. *Applied Mechanics and Materials*, **787**, 612–616.
- [18] Asi, Osman. (2008). Mechanical Properties of Glass-Fiber Reinforced Epoxy Composites Filled with Al₂O₃ Particles. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*.
- [19] Mohanty, Akash & Srivastava, V. & Sastry, Pulya. (2014). Investigation of Mechanical Properties of Alumina Nanoparticle-Loaded Hybrid Glass/Carbon-Fiber-Reinforced Epoxy Composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 131.
- [20] Raju, B., Suresha, B., Swamy, R. and Kanthraju, B., (2013). Investigations on Mechanical and Tribological Behaviour of Particulate Filled Glass Fabric Reinforced Epoxy Composites. *Journal of Minerals and Materials Characterization and Engineering*, **1**, 160-167.
- [21] Nayak RK, Dash A, Ray B, (2014). Effect of epoxy modifiers (Al₂O₃/SiO₂/TiO₂) on mechanical performance of epoxy/glass fiber hybridcomposites. *Procedia materials science*, **6**, 1359-64.
- [22] Shahabaz, S. M., Mehrotra, P., Kalita, H., Sharma, S., Naik, N., Noronha, D. J., & Shetty, N., (2023). Effect of Al₂O₃ and SiC Nano-Fillers on the Mechanical Properties of Carbon Fiber-Reinforced

- Epoxy Hybrid Composites. *Journal of Composites Science*, **7(4)**, 133.
- [23] Xinrui Zhang, (2017). Study on the Tribological Properties of Carbon Fabric Reinforced Phenolic Composites Filled with Nano- Al_2O_3 . *Journal of Macromolecular Science, Part B*, **56(8)**, 568-577.
- [24] Kaybal, Halil & Ulus, Hasan & Demir, Okan & Şahin, Ömer & Avci, Ahmet, (2018). Effects of alumina nanoparticles on dynamic impact responses of carbon fiber reinforced epoxy matrix nanocomposites. *Engineering Science and Technology, an International Journal*, **21(3)**, 399-407.
- [25] Nayak RK, (2019). Influence of seawater aging on mechanical properties of nano- Al_2O_3 embedded glass fiber reinforced polymer nanocomposites. *Construction and Building Materials*, **221**, 12-19.
- [26] Hu H, Wang W, Jiang L, et al, (2022). Curing mechanism of resole phenolic resin based on variable temperature FTIR spectra and thermogravimetry-mass spectrometry. *Polymers and Polymer Composites*, **30**.