REVISTA DA CEFAMOL *ASSOCIAÇÃO NACIONAL DA INDÚSTRIA DE MOLDES*

MOLDE

ANO 26
01.2015
Nº104
€4,50

CONFERÊNCIA PMI 2014



OPERAÇÕES NO INTERIOR DO MOLDE: INTEGRAÇÃO DE SOLDADURA A LASER E MONTAGEM

REFORMULAÇÃO E ANÁLISE DO MOLDE PARA O FABRICO DE UM MICROACELERÓMETRO

HOLANDA: PARCEIRO DE LONGA DATA

COMPÓSITOS AVANÇADOS DE MATRIZ TERMOPLÁSTICA REFORÇADA COM FIBRAS DE CARBONO OBTIDOS POR PULTRUSÃO

ADVANCED THERMOPLASTIC CARBON FIBRE REINFORCED PULTRUDED COMPOSITES

P. J. NOVO[1], J. F. SILVA[2], J. P. NUNES[3], A. T. MARQUES[4]
1 - DEP. DE ENGENHARIA MECÂNICA, ESTG, INSTITUTO POLITÉCNICO DE LEIRIA, LEIRIA
2 - DEP. DE ENGENHARIA MECÂNICA, ISEP, PORTO
3 - INSTITUTO DE POLÍMEROS E COMPÓSITOS/I3N, UNIVERSIDADE DO MINHO,GUIMARÃES
4 - DEMEGI / FEUP, PORTO

RESUMO

O objetivo deste trabalho é otimizar a produção de pré-impregnados de fibras de carbono reforçadas com matrizes termoplásticas (towpregs), processados em contínuo pela deposição de polímero em pó utilizando um novo equipamento desenvolvido pelo Instituto de Polímeros e Compósitos (IPC). O processamento de towpregs por pultrusão, num equipamento protótipo desenvolvido na escola de Engenharia do Instituto Politécnico do Porto (ISEP), foi também otimizado.

Estudaram-se ainda duas matrizes termoplásticas diferentes: uma para aplicações comerciais (polipropileno) e uma outra para mercados avançados (Primospire®).

A otimização foi feita através do estudo da influência dos parâmetros mais relevantes do processamento, nas propriedades finais dos towpregs produzidos e respectivos compósitos. Os perfis em compósito, produzidos por pultrusão, foram submetidos a ensaios mecânicos a fim de se obterem as propriedades mais relevantes.

ABSTRACT

The aim of this work is to optimize the production of new continuous carbon fibers reinforced thermoplastic matrix pre-impregnated materials (towpregs) continuously processed by dry deposition of polymer powders in a new equipment developed by the Institute for Polymers and Composites (IPC). The processing of the produced towpregs by pultrusion, in a developed prototype equipment existing in the Engineering School of the Polytechnic Institute of Porto (ISEP), was also optimized.

Two different thermoplastic matrices were studied: one for commercial applications (polypropylene) and another for advanced markets (Primospire®).

The optimization was made by studying the influence of the most relevant processing parameters in the final properties of the produced towpregs and composites. The final pultruded composite profiles were submitted to mechanical tests in order to obtain relevant properties.

1 INTRODUÇÃO

Durante as últimas décadas, os materiais compósitos têm vindo a substituir com êxito os materiais mais tradicionais em muitas aplicações de engenharia devido às suas excelentes propriedades, principalmente as propriedades mecânicas específicas [1, 2].

A pultrusão é um processo de fabrico em contínuo usado em materiais compósitos de matriz polimérica para produzir perfis com secção constante. As fibras de reforço, em forma de mechas de fios contínuos e, eventualmente, mantas ou tecidos, são puxados através de placas guia e impregnados passando por um banho de resina termoendurecível.

Até ao presente, quase todas as aplicações que utilizam a tecnologia de fabrico por pultrusão usam resinas termoendurecíveis devido às dificuldades inerentes ao uso de matrizes termoplásticas neste processo. No entanto, os desenvolvimentos recentes na produção de pré-impregnados que facilitam a impregnação das fibras de reforço, como por exemplo as fitas pré-consolidadas (PCT), as misturas de fibras poliméricas e reforço (commingled yarns) e as fibras de reforço com pó de po-

1 INTRODUCTION

During the last decades, composites have successfully replaced traditional materials in many engineering applications due to its excellent properties, mainly their excellent specific mechanical properties [1, 2].

Pultrusion is a continuous manufacturing process used to shape polymeric composite materials into parts with constant cross section. The reinforcement fibres in the form of continuous strands or mats are pulled through a guide plate and impregnated passing by a thermosetting resin bath.

So far, almost all applications of pultrusion manufacturing technologies use thermosetting resins due to inherent difficulties associated with the use of thermoplastic matrices in this process. However, with recent developments, the use of preforms to facilitate impregnation, such as pre-consolidated tapes, commingled yarns and towpregs, allowed the thermoplastic pultrusion to gain a great interest [3].

Composites with thermoplastic matrices offers increased fracture toughness, higher impact tolerance, short processing cycle time and excellent environmental stability. They are recyclable, post-formable and can be joined by welding. The use of long/continuous fibre reinforced thermoplastic matrix composites involves, however, great technological and scientific chal-

Tabela 1. Propriedades das matérias-primas usadas nos towpregs

priedades	PP em pó (ICORENE 9184B P®)		Primospire ®		Fibra de carbono (TORAY M30 SC ®)	
	Informação do fornecedor	Experimental	Informação do fornecedor	Experimental	Informação do fornecedor	Experimental
e linear (Tex)	-	-	-	-	760	-
ecífico (Mg/m^3)	0.91	0.91	1.21	-	1.73	-
e rotura (MPa)	Tensão de cedência 30	Tensão de cedência 19	207	104.0	5490	2731[a]
de Young (GPa)	1.3	0.98	8.3	8.0	294	194,5
de de Poisson	-	0.21	-	-	-	-
médio das s de pó (µm)	440	163	-	139	-	-
tura de vítrea (T_g)	-	-	158	156	-	-
tura de fusão	Valor típico 170	166	-	-	-	-
médio das m)	-	-	-	-	5	7,37

ido de comprimentos de fibra longas

Table 1 – Properties of towpregs raw-materials

Property	PP powder (ICORENE 9184B P®)		Primospire ®		Carbon fiber (TORAY M30 SC ®)	
	Manufacturer datasheet	Experimental	Manufacturer datasheet	Experimental	Manufacturer datasheet	Experimental
Linear density (Tex)	-	-	-	-	760	-
Specific gravity (Mg/m^3)	0.91	0.91	1.21	-	1.73	-
Tensile strength (MPa)	Yield Strength 30	Yield Strength 19	207	104.0	5490	2731
Young Modulus (GPa)	1.3	0.98	8.3	8.0	294	194,5
Poisson's ratio	-	0.21	-	-	-	-
Average powder particle size (µm)	440	163	-	139	-	-
Glass transition temperature (T_g)	-	-	158	156	-	-
Melting temperature (T_m)	Typical value 170	166	-	-	-	-
Average fiber diameter	-	-	-	-	-	7,37

) (towpregs), têm permitido que a pultrusão com matrizes ter-
ısticas ganhe um interesse crescente [3].

mpósitos com matrizes termoplásticas apresentam elevada te-
ade à fratura, maior tolerância ao dano, tempo de ciclo mais re-
) e excelente resistência em meios corrosivos. Estes compósitos
:icicláveis, re-processáveis e podem ser facilmente ligados por
dura.

zação de compósitos de matriz termoplástica reforçada com fi-
ongas ou contínuas envolve, no entanto, grandes desafios tec-
cos e científicos pois as matrizes termoplásticas apresentam
maior viscosidade que as termoendurecíveis, tornando muito
e complexa a impregnação do reforço e as tarefas de consolida-
,4-9].

nente, as duas principais tecnologias que estão a ser usadas para
tir a adesão do polímero termoplástico às fibras de reforço [6-9],
a fusão direta do polímero e, ii) a mistura de fibras de reforço e
ímero termoplástico antes da fabricação do compósito final. Al-
ivamente, estes últimos processos permitem a produção de ma-
; pré-impregnados mais baratos e promissores, tais como,
ingled yarns, tecidos e towpregs.

zes, para melhorar a adesão dos reforços às matrizes e facilitar
mpregnação são adicionados a estas compatibilizadores termo-
:os [10].

trabalho utilizaram-se duas matérias-primas na produção de
gs de matriz termoplástica: fibras de carbono e Primospire®,
nercados altamente exigentes e fibras de carbono e polipropi-
ara mercados mais comerciais.

TE EXPERIMENTAL

ATÉRIAS-PRIMAS

trabalho, para mercados comerciais os pré-impregnados de
produzidos (towpregs) utilizaram as seguintes matérias-pri-
] pó de PP ICORENE 9184B P® e mechas de fibras de carbono
C® fornecidos pela ICO polymers e TORAY, respetivamente (Fig.
ó de PP (ICORENE 9184B P ®) com 1% de teor em massa de ani-
naleico S 47 29608 707® da Merck Schuchardt OHG, a fim de ava-
possibibildade de melhoria da adesão entre a fibra e a matriz
].

lenges since thermoplastics present much higher viscosity than thermosettings, which makes much difficult and complex the impregnation of reinforcements and consolidation tasks [2,4-9].

Today, two major technologies are being used to allow wet reinforcing fibres with thermoplastic polymers [6-9]: i) the direct melting of the polymer and, ii) the intimate fibre/matrix contact prior to final composite fabrication. Alternatively, intimate contact processes allow the production of cheap and promising pre-impregnated materials, such as, commingled fibres, co-woven fabrics and powder coated towpregs.

Sometimes, thermoplastic compatibilizers were added to the matrices to improve their adhesion and facilitate impregnation to reinforcements [10].

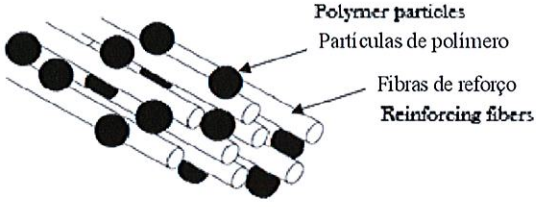
In this work two different raw-materials were used in the production of the thermoplastic matrix towpregs, those to be used in parts for highly demanding markets were based on carbon fibres and Primospire® and those for more commercial composites on carbon fibre and polypropylene.

2 EXPERIMENTAL

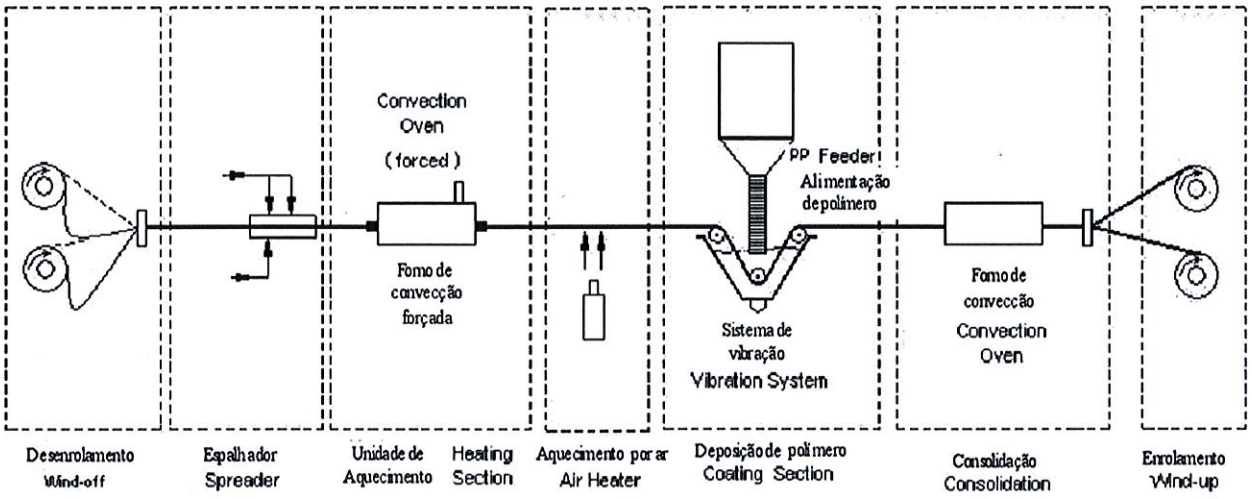
2.1 RAW-MATERIALS

The following raw materials were used to produce CF/PP pre-impregnated materials for this work, for commercial markets: i) a PP powder ICORENE 9184B P® and carbon fibre roving M30 SC® from the ICO Polymers and TORAY, respectively, were used to produce the CF/PP towpregs (Fig. 1), ii) Some batches of CF/PP towpregs were also produced using PP powder (ICORENE 9184B P®) with 1% in mass content of maleic anhydride additive, S 47 29608 707® from Merck Schuchardt OHG, in order to assess the possible enhancement of fibre/matrix adhesion [10-14].

On other hand, composite parts for highly demanding advanced markets



F1 – Towpregs de FC/PP e FC/Primospire.
CF/PP and CF/Primospire pre-impregnated products.



F2 – Esquema da linha de deposição de polímero em pó.
Powder coating line setup.

Por outro lado, foram processados a partir dos towpregs fabricados, peças em material compósito para mercados avançados de elevado desempenho, utilizando um polímero termoplástico amorfo altamente aromático em forma de pó, o PRIMOSPIRE ® PR 120 fornecido pela Solvay Advanced Polymers e mechas de fibras de carbono 760 Tex M30SC fornecidas pela TORAY. A tabela 1 apresenta as propriedades mais relevantes das matérias-primas utilizadas.

2.2 PRODUCÃO DE TOWPREGS

Os towpregs foram produzidos utilizando um equipamento de deposição de polímero seco em pó, esquematicamente representado na Fig. 2 [14,15]. Esta máquina é composta por seis partes principais: sistema de desenrolamento, espalhador de fibras, unidade de aquecimento, secção de deposição de polímero, unidade de consolidação e sistema de enrolamento. Inicialmente, as fibras de reforço são desenroladas e puxadas atravessando um espalhador pneumático, sendo posteriormente revestidas com polímero através do aquecimento das fibras num forno de convecção, fazendo-as passar num banho em vibração de polímero seco em pó. Um sistema de gravidade possibilita manter, no banho, uma quantidade constante de polímero. O forno da unidade de consolidação permite amolecer o polímero em pó, melhorando a sua adesão à superfície da fibra. Finalmente, o towpreg é arrefecido e enrolado numa bobine.

were processed from towpregs manufactured by using a highly aromatic amorphous thermoplastic polymer in powder form, the PRI-MOSPIRE® PR 120 from Solvay Advanced Polymers, and 760 Tex M30SC carbon fibre tows from TORAY. Table 1 presents the most relevant proper-ties determined for these raw materials.

2.2 PRODUCTION OF TOWPREGS

Towpregs were produced in a dry powder coating equipment schematically shown in Fig. 2 [14,15]. It consists of six main parts: wind-off system, fiber spreader unit, heating section, coating section, consolidation unit and a wind-up section. Initially, the reinforcing fibers are wound off and pulled through a pneumatic spreader and then coated with polymer by heating in a convection oven and made to pass into a polymer powder vibrating bath. A gravity system allows maintaining the amount of polymer powder constant. The consolidation unit oven allows softening the polymer powder, promoting its adhesion to the fiber surface. Finally, the thermoplastic matrix towpreg is cooled down and wound-up on a spool.

2.3 TOWPREG CF/PP PRODUCTION OPTIMIZATION

In order to optimize the production of CF/PP powder coated towpregs, different processing variables combinations were experimented and the number of trials optimized using the Taguchi approach. The studied operational parameters were:

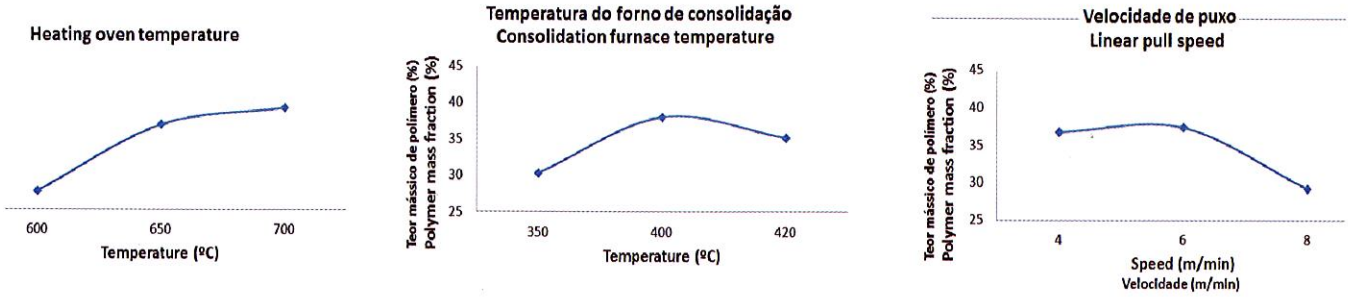
- heating oven temperature (600, 650 and 700 °C);

Tabela 2 – Método Taguchi aplicado ao processo de fabrico de towpregs

Experiências	Variáveis de processo			Resultados
	Temperatura do forno de aquecimento (°C)	Temperatura do forno de consolidação (°C)	Velocidade de puxo (m/min)	Fração mássica de polímero (%)
1	600	350	4	32.2
2	600	400	6	31.4
3	600	420	8	20.6
4	650	350	8	27.9
5	650	400	4	39.9
6	650	420	6	40.7
7	700	350	6	35.6
8	700	400	8	40.6
9	700	420	4	40.4
			Média	34.5

Table 2 – Taguchi approach applied to towpregs manufacturing process

Experiments	Processing variables			Results :
	Heating oven temperature (°C)	Consolidation furnace temperature (°C)	Linear pulling speed (m/min)	Polymer mass fraction (%)
1	600	350	4	32.2
2	600	400	6	31.4
3	600	420	8	20.6
4	650	350	8	27.9
5	650	400	4	39.9
6	650	420	6	40.7
7	700	350	6	35.6
8	700	400	8	40.6
9	700	420	4	40.4
			Average	34.5



ation of towpreg polymer content with processing parameters
n of towpreg polymer content with processing parameters

ZAÇÃO DA PRODUÇÃO DE TOWPREGS DE FC/PP

timizar a produção de towpregs de FC/PP, foram utilizadas di-
variáveis de processamento e o número de experiências foi
ado usando o método Taguchi. Os parâmetros operacionais es-
oram:
tura do forno de aquecimento (600, 650 e 700 °C);
tura do forno de consolidação (350, 400 e 450 °C);
de de puxo (4, 6 e 8 m/min).

jem Taguchi foi aplicada ao processo de produção de towpregs
bter a condição que maximiza o teor mássico de polímero.

- consolidation oven temperature (350, 400 and 450 ºC);
- linear pull speed (4, 6 and 8 m/min).

The Taguchi approach was applied to the towpregs production process in order to obtain the condition that maximizes polymer powder content.

The polymer mass fraction in the towpregs, was determined by weighting towpreg strips produced in those different conditions.

Table 2 shows the used processing conditions and obtained results, according to the established design of experiments. The average polymer mass content in towpregs, established by the design of experiences was 34.5%.



Tabela 3 – As melhores condições operatórias para produzir towpregs usados em compósitos destinados a mercados avançados

Variáveis de processamento	Unidades	Valores
		Towpregs de FC/Primospire ®
Temperatura do forno de aquecimento	°C	700
Temperatura do forno de consolidação	°C	500-550
Velocidade de puxo	m/min	4-6

Table 3 – Best conditions to produce towpregs used in composites for advanced markets.

Variable	Units	Values
		CF/Primospire ® towpregs
Convective oven temperature	°C	700
Consolidation furnace temperature	°C	500-550
Coating line pulling speed	m/min	4-6

A fração mássica de polímero nos towpregs foi obtida pela determinação da massa de segmentos de towpregs produzidos em diferentes condições.

A tabela 2 mostra as condições de processamento utilizadas e os resultados obtidos, de acordo com o desenho de experiências estabelecido. A média do teor mássico de polímero nos towpregs foi 34,5%.

Os principais efeitos das variáveis de processamento nos resultados obtidos podem ser vistos na Fig. 3.

A condição ótima obtida a partir da aplicação do método Taguchi conduziu à seguinte seleção de parâmetros operacionais: temperatura do forno aquecimento e temperatura de forno de consolidação de 700°C e 400 °C, respetivamente e uma velocidade de puxo de 4 m/min. Usando esta condição operacional ótima, a quantidade de polímero deveria aumentar até 45,6%. No entanto, a condição operativa que foi escolhida como ótima tinha uma velocidade de puxo de 6 m/min, permitindo assim uma alta taxa de produção, menores problemas de processamento e níveis suficientes de teores mássicos de polímero (40%, é suficiente nos towpregs a serem utilizados no processo de pultrusão). Além disso, a adição de 1% de anidrido maleico ao PP não teve nenhuma influência sobre a fração mássica de polímero no towpreg.

2.4 PRODUÇÃO DE TOWPREGS DE FC/ PRIMOSPIRE®

No sentido de produzir towpregs de FC/Primospire, o equipamento de deposição de polímero em pó foi operado com diferentes temperaturas dos fornos e velocidades de puxo (ver tabela 3). Deste trabalho, os melhores valores das variáveis operacionais que permitiram simultaneamente produzir towpregs em condições estáveis e que maximizaram o

The mains effects of the processing variables on the results can be seen from Fig. 3.

The optimal condition obtained from Taguchi method application led to the following operating parameters selection: heating oven temperature and consolidation oven temperatures of 700 °C and 400°C respectively, and a linear pulling speed of 4 m/min. Using this optimal operative condition, the amount of polymer should increase up to 45.6%. However, the operative condition that has chosen as optimal had a line pull speed of 6 m/min allowing a high rate of production, lower processing problems and sufficiently levels of polymer content (40%, enough for the of use of towpregs in the pultrusion process). Also, the addition of 1% of maleic anhydride to the PP polymer had no influence on the towpreg polymer mass fraction.

2.4 TOWPREG CF/ PRIMOSPIRE® PRODUCTION

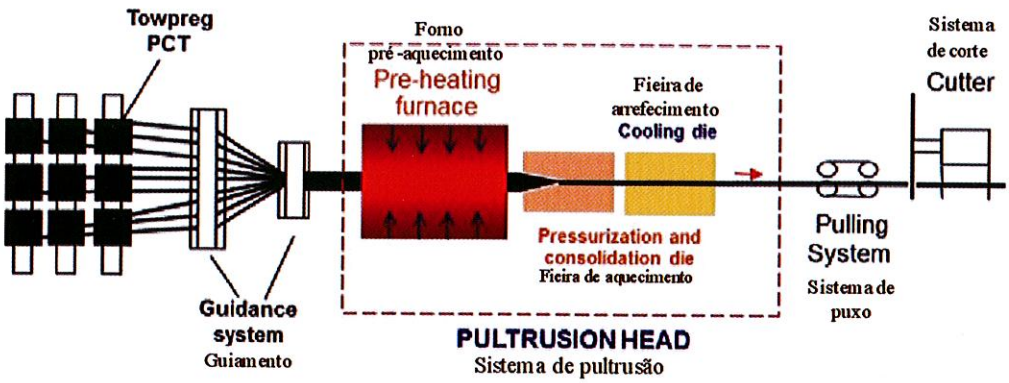
In order to produce CF/Primospire towpregs, the powder coating equipment was operated at different woven temperatures and fibre linear pull speeds (see Table 3). From such work the best values of the operational variables, which allow simultaneously producing towpregs in good and stable circumstances and having the maximum polymer powder content were:

- heating oven temperature - 700 °C;
- consolidation oven temperature - 525 °C;
- linear pull speed - 6 m/min.

Using those conditions towpregs with a polymer mass content of aprox. 40% were produced.

2.5 PRE-IMPREGNATED MATERIALS PROCESSING

Towpregs were processed into composite bar profiles using a 10 kN proto-



F4 – Esquema de uma linha de pultrusão.
Schematic diagram of the pultrusion line.

4 – Resultados do ensaio de flexão dos perfis produzidos obtidos a partir de towpregs FC/PP

Variáveis de processamento			Propriedades de flexão	
Temperatura do forno de pré-aquecimento (°C)	Temperatura da fieira de aquecimento (°C)	Velocidade de puxo (m/min)	Módulo à flexão (GPa)	Tensão de rotura (MPa)
160	240	0.2	86.7 ± 1.3	229.0 ± 7.3
180	240	0.2	79.5 ± 2.0	212.4 ± 12.6
160	260	0.2	91.0 ± 0.4	241.2 ± 1.6
180	260	0.2	85.1 ± 1.7	218.2 ± 9.1
160	240	0.3	82.1 ± 2.8	241.7 ± 13.1
180	240	0.3	87.5 ± 1.9	239.6 ± 13.3
160	260	0.3	85.0 ± 4.4	234.5 ± 11.5
180	260	0.3	83.7 ± 2.8	221.3 ± 7.1

Table 4 – Flexural testing results from CF/PP towpregs

	Processing variables			Flexural properties	
Exper.	Furnace temperature (°C)	Heating die temperature (°C)	Linear pulling speed (m/min)	Flexural modulus (GPa)	Flexural strength (MPa)
1	160	240	0.2	86.7 ± 1.3	229.0 ± 7.3
2	180	240	0.2	79.5 ± 2.0	212.4 ± 12.6
3	160	260	0.2	91.0 ± 0.4	241.2 ± 1.6
4	180	260	0.2	85.1 ± 1.7	218.2 ± 9.1
5	160	240	0.3	82.1 ± 2.8	241.7 ± 13.1
6	180	240	0.3	87.5 ± 1.9	239.6 ± 13.3
7	160	260	0.3	85.0 ± 4.4	234.5 ± 11.5
8	180	260	0.3	83.7 ± 2.8	221.3 ± 7.1

de polímero, foram:
do forno de aquecimento - 700 °C;
do forno de consolidação - 525 °C;
e puxo - 6 m/min.

condições foram produzidos towpregs com um teor más-
ero de aproximadamente 40%.

MENTO DE MATERIAIS PRÉ-IMPREGNADOS

oram processados em perfis em material compósito num protótipo de pultrusão de 10kN [16, 17], esquematica-entado na Fig. 4. O equipamento consiste em cinco par-i) uma estante inicial para armazenagem de towpregs; ii) iamento; iii) sistema de pultrusão, que inclui um forno de nto e fieiras de pressurização/consolidação e de arrefe-sistema de puxo e, v) o sistema de corte do perfil produ-

perfis compósitos, os materiais pré-impregnados são o interior de um forno de pré-aquecimento para serem uma temperatura desejada. Em seguida, entram na pri-nde são aquecidos e pressurizados/consolidados nas di-eridas e posteriormente são arrefecidos na fieira seguinte rem. Os perfis pultrudidos são então cortados em com-pecificados.

na fieira, com uma cavidade de 20 × 2 (mm), para produzir angular.

type pultrusion line equipment [16, 17], schematic depicted in Fig.4. The equipment consists in five main parts: i) an initial towpreg bobbins holding cabinet; ii) guiding system; iii) pultrusion head, that includes a pre-heating furnace and the pressurization/consolidation and cooling dies; iv) pulling system and, v) the final profile cutting system.

To produce composite profiles, the pre-impregnated materials are guided into the pre-heating furnace to be heated up to the required temperature. Then, they enter in the pultrusion die to be heated up and consolidated to the required size in its first zone and, after cooled down in order to solidify. The pultruded material is then cut into specified lengths.

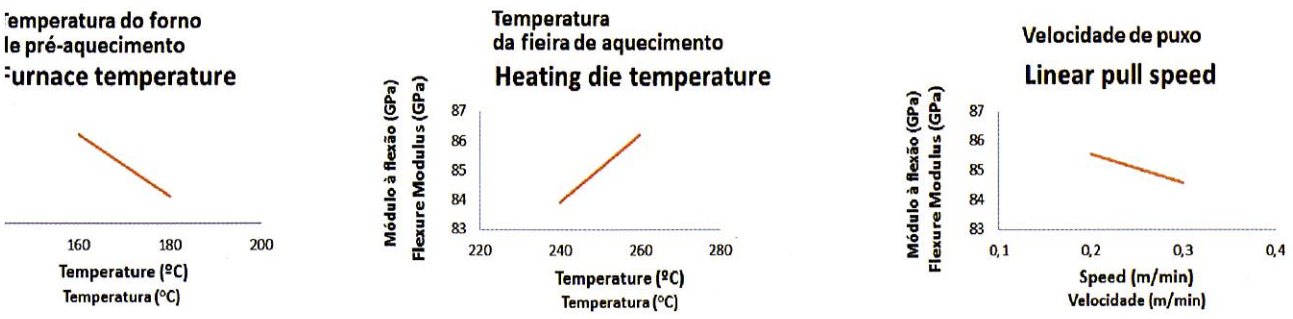
A die with a cavity of 20 ×2 (mm) was used to produce a composite rectangular shaped bar.

2.5.1 TOWPREG CF/PP PROCESSING AND OPTIMIZATION

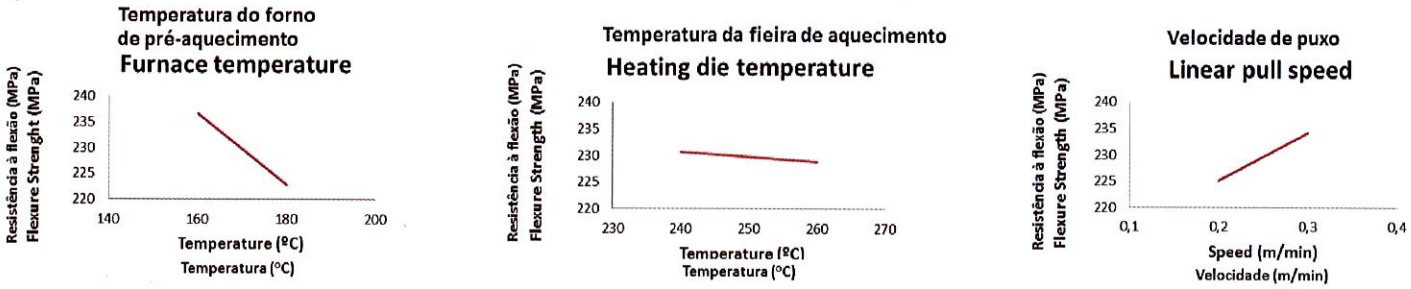
Bar profiles were manufactured by pultrusion from different towpregs, using operating conditions in order to optimize the processing. The studied processing variables were:
-Furnace temperature (160 and 180 °C);
-Heating die temperature (240 and 260 °C);
-Linear pull-speed (0.2 and 0.3 m/min).

Results have shown that was not possible to produce in steady conditions pultruded profiles from towpregs at pultrusion speeds and consolidation die temperatures higher than 0.4 m/min and 260 °C, respectively.

By using higher values in these two parameters the process became unsteady mainly due to reflux and accumulation of the thermoplastic po-



do módulo à flexão com os parâmetros de processamento selecionados.
he flexural modulus with the selected processing parameters.



F6 – Variação da tensão de rotura à flexão com os parâmetros de processamento selecionados.
Variation of the flexural strength with the selected processing parameters.

2.5.1 PROCESSAMENTO E OTIMIZAÇÃO DE TOWPREGS FC/PP

Os perfis em forma de barra foram fabricados por pultrusão a partir de towpregs, utilizando diferentes condições operatórias no sentido de se otimizar o processo. As variáveis de processamento estudadas foram:

-temperatura do forno de pré-aquecimento (160 e 180 °C);
-temperatura da fieira de aquecimento (240 e 260 °C);
-velocidade de puxo (0.2 e 0.3 m/min).

Os resultados revelaram que não era possível produzir perfis pultrudidos em condições estáveis a partir de towpregs, com velocidades de puxo e temperaturas da fieira de aquecimento superiores a 0,4 m/min e 260°C, respetivamente.

O uso de valores mais elevados destes dois parâmetros, tornou o processo instável, principalmente devido ao refluxo e acumulação do polímero termoplástico nas entradas das fieiras de consolidação e arrefecimento, respetivamente.

A tabela 4 resume os resultados do ensaio de flexão obtidos para as condições de processamento estudadas.

A variação do módulo à flexão e da tensão de rotura à flexão com os parâmetros de processamento selecionados pode ser visualizada nas figuras 5 e 6.

A condição ótima obtida relativa à maximização da rigidez à flexão con-

lymer at the entrances of the consolidation and cooling dies, respectively.

Table 4 summarizes the flexural test results obtained with the studied processing conditions.

The variation of the flexural modulus and strength with the selected processing parameters can be seen in Figures 5 and 6.

The optimal condition concerning flexural stiffness maximization obtained led to the following operating parameters selection: furnace and heated die oven temperatures of 160 °C and 260°C respectively, and a linear pulling speed of 0.2 m/min. For optimizing the flexural strength the obtained parameters combination was: furnace and heated die oven temperatures of 160 °C and 240°C respectively, and a linear pulling speed of 0.3 m/min.

It is possible observe that the furnace temperature of 160°C lead to the better results. That could be explained by the lower polymer reflux on the entrance of the heated die. The optimal operating conditions to maximize both flexural proprieties (modulus and strength) were: furnace and heated die oven temperatures of 160 °C and 260°C respectively, and a linear pulling speed of 0.2 m/min.

Finally, towpregs with additive were also pultruded into bars using the condition that optimizes both flexural properties and two more conditions (see Table 5).

Tabela 5 – Propriedades à flexão dos towpregs com aditivo processados por pultrusão

Experiências	Variáveis de processamnto			Propriedades de flexão	
	Temperatura do forno de pré-aquecimento (°C)	Temperatura da fieira de aquecimento (°C)	Velocidade de puxo (m/min)	Módulo à flexão (GPa)	Tensão de rotura (MPa)
1	160	260	0,2	229.0 ± 7.3	87.6± 1,3
2	160	240	0,2	191.7 ± 7.8	70.4 ± 2.8
3	160	240	0,3	237.4 ± 11.8	80.5 ± 2.6

Table 5 – Flexural properties of towpregs with additive processed by pultrusion

Exper.	Processing variables			Flexural properties	
	Furnace temperature (°C)	Heating die temperature (°C)	Linear pulling speed (m/min)	Flexural modulus (GPa)	Flexura l strength (GPa)
1	160	260	0,2	229.0 ± 7.3	87.6± 1,3
2	160	240	0,2	191.7 ± 7.8	70.4 ± 2.8
3	160	240	0,3	237.4 ± 11.8	80.5 ± 2.6

Tabela 6 – Resultados dos ensaios à flexão em perfis obtidos por pultrusão a partir de towpregs com e sem aditivo

Parâmetros de processo		Módulo à flexão (GPa)		Tensão de rotura à flexão (GPa)	
		Sem aditivo	Com aditivo	Sem aditivo	Com aditivo
Temperatura do forno de pré-aquecimento	160	90.1 ± 0.4	87.6 ± 1.3	241.2 ±1.6	229.0 ± 7.3
Temperatura da ficira de aquecimento (°C)	260				
Velocidade linear de puxo (m/min)	0,2				

Table 6 – Flexural test results on towpreg bars with and without additive

Processing parameters		Flexural modulu s (GPa)		Flexural strenght (GPa)	
		Without additive	With additive	Without additive	With additive
Furnace temperature (°C)	160	90.1 ± 0. 4	87.6 ± 1. 3	241. 2 ±1.6	229.0 ± 7. 3
Heating die temperature (°C)	260				
Linear pulling speed (m/min)	0,2				

à seguinte seleção de parâmetros operacionais: temperaturas no de pré-aquecimento e da fieira de aquecimento de 160 °C e respetivamente e uma velocidade de puxo de 0,2 m/min. Para oti- a resistência à flexão a combinação de parâmetros obtidos foi: eraturas do forno de pré-aquecimento e da fieira de aquecimento 0 °C e 240°C, respetivamente e uma velocidade de puxo de /min.

sível observar que a temperatura do forno de pré-aquecimento de conduz a melhores resultados. Isso pode ser explicado pelo me- fluxo de polímero à entrada da fieira de aquecimento. As condi- operacionais ótimas para maximizar ambas as propriedades à (módulo e tensão de rotura) foram: temperaturas do forno de quecimento e da fieira de aquecimento de 160 °C e 260°C, respe- ente e uma velocidade de puxo de 0,2 m/min.

nente, os towpregs com aditivo também foram processados em s rectangulares, por pultrusão, sendo utilizadas três condições, uma delas a que otimiza ambas as propriedades à flexão (ver ta-).

ela 6 mostra os resultados dos ensaios à flexão usando perfis os por pultrusão a partir de towpregs com e sem adição de ani- maleico. É possível concluir que o uso do aditivo não teve ne- ia influência significativa sobre as propriedades à flexão adas.

PROCESSAMENTO DE TOWPREGS DE FC/PRIMOSPIRE

rfis obtidos por pultrusão de FC/Primospire foram produzidos is condições operacionais apresentadas na Tabela 7.

Table 6 shows the obtained results from flexural tests using towpreg pultruded bars with and without additive of maleic anhydride. It is possible to conclude that use of additive had no significant influence on the flexural properties.

2.5.2 TOWPREG CF/ PRIMOSPIRE® PROCESSING

The CF/Primospire pultruded bars were produced in this work with the operational conditions presented in Table 7.

As it may be seen and as expected, the CF/Primospire® towpregs required the use of much higher temperatures than the CF/PP ones in pre-heating furnace and pressurization/consolidation die. Due to such higher temperatures, tests still continue being done to optimise the operational conditions to be used in the pultrusion of the CF/Primospire® towpregs.

2.6 COMPOSITE TESTING

Samples of pultruded bars were submitted to flexural, tensile, interlaminar and calcination tests according to the ISO standards 14125, 527, 14130 and 1172, respectively.

Table 8 summarizes all experimentally obtained test results with CF/PP composites.

Table 9 summarizes all experimentally obtained test results with CF/Primospire composites.

3 CONCLUSIONS

Obtained results allow the conclusion that all the pre-impregnated products studied in this work presented enough good properties to be employed in

Tabela 7 – Condições usadas para processar os perfis em material compósito a partir de towpregs de FC/Primospire

Variáveis de processamento	Unidades	Valores
		Towpregs de FC/Primospire ®
peratura do forno de pré-aquecimento	°C	380-400
peratura da fieira de aquecimento	°C	420-475
peratura da fieira de arrefecimento	°C	20
cidade de puxo	m/min	0.2

Table 7 – Conditions used to process the pultruded composite bars from the CF/Primospire towpregs

Variable	Units	Values
		CF/Primospire ® towpregs
Pultrusion pull speed	m/min	0.2
Pre-heating furnace temperature	°C	380-400
Pressurisation/ consolidation die temperature	°C	420-475
Cooling die temperature	°C	20

bela 8 – Resultados dos ensaios realizados aos compósitos com FC/PP

Tipo de teste	Propriedades	*Pultrusão*	
		Towpreg FC/PP	*Towpreg FC/PP com aditivo*
Flexão	Módulo à flexão (GPa)	90.1±0.4	87.6±1.3
	Módulo à flexão / Fração volúmica de fibra (GPa)	178.1±0.8	173.5±2.6
	Tensão de rotura (MPa)	241.2±1.6	229.0±7.3
	Tensão de rotura / Fração volúmica de fibra (MPa)	476.7±3.2	453.5±14.5
Tração	Módulo à tracção (GPa)	110.6±5.9	106.1±6.3
	Módulo à tração / Fração volúmica de fibra (GPa)	218.6±11.7	210.1±12.5
	Tensão de rotura (MPa)	1069±43	-
	Tensile de rotura / Fração volúmica de fibra (GPa)	2112.3±85	-
Corte interlamina r	Tensão de corte interlaminar (MPa)	12.3±0.3	13.0±0.4
Fração volúmica de fibra (%)		50.6	50.5

Table 8 – Composite CF/PP mechanical test results

Test Type	Property	*Pultrusion*	
		Towpreg	*Towpreg with additive*
Flexural	Flexure Modulus (GPa)	90.1±0.4	87.6±1.3
	Flexure Modulus / Fibre volume fraction (GPa)	178.1±0.8	173.5±2.6
	Flexure Strength (MPa)	241.2±1.6	229.0±7.3
	Flexure Strength / Fibre volume fraction (MPa)	476.7±3.2	453.5±14.5
Tensile	Tensile Modulu s (GPa)	110.6±5.9	106.1±6.3
	Tensile Modulus / Fibre volume fraction (GPa)	218.6±11.7	210.1±12.5
	Tensile Strength (MPa)	106 9±43	-
	Tensile Strength / Fibre volume fraction (GPa)	2112.3 ±85	-
Inter-laminar Shear	Interlaminar Shear St rength (MPa)	12.3±0.3	13.0±0.4
Fibre volume fraction (%)		50.6	50.5

Tabela 9 – Resultados dos ensaios realizados aos compósitos com FC/Primospire

Tipo de teste	Propriedades	*Pultrusão*
		Towpreg FC/Primospire
Flexão	Módulo à flexão (GPa)	56.1±2.9
	Tensão de rotura (MPa)	253.6±16.1
Tração	Módulo à tração (GPa)	92.2±5.6
	Tensão de rotura (MPa)	>600
Corte interlaminar	Tensão de corte interlaminar (MPa)	25.4±2.1

Table 9 – Composite CF/Primospire mechanical test results

Test Type	Property	*Pultrusion*
		CF/Primospire ® towpreg
Flexural	Flexure Modulus (GPa)	56. 1± 2.9
	Flexure Strength (MPa)	253 .6±16.1
Tensile	Tensile Modulu s (GPa)	92. 2±5.6
	Tensile Strength (MPa)	> 600
Inter - laminar Shear	Interlaminar Shear St rength (MPa)	25 .4±2.1

Como pode ser visto e esperado, os towpregs de FC/Primospire® requereram o uso de temperaturas muito mais elevadas do que os towpregs de FC/PP no forno de pré-aquecimento e na fieira de pressurização/ consolidação. Devido ao uso de temperaturas muito elevadas, ainda se continuam a realizar experiências para otimizar as condições operacionais usadas na pultrusão de towpregs de FC/Primospire®.

2.6 ENSAIOS DOS COMPÓSITOS OBTIDOS POR PULTRUSÃO

As amostras de perfis obtidos por pultrusão foram submetidas a ensaios de flexão, de tração, de corte interlaminar e calcinação de acordo com as normas ISO 14125, 527, 14130 e 1172, respetivamente.

A Tabela 8 sumaria todos os resultados experimentais dos compósitos com FC/PP.

A Tabela 9 sumaria todos os resultados experimentais dos compósitos com FC/Primospire.

3 CONCLUSÕES

Os resultados obtidos permitem concluir que todos os produtos pré-impregnados estudados neste trabalho apresentaram propriedades suficientemente relevantes para serem empregues em aplicações comerciais de engenharia.

Relativamente aos ensaios de corte interlaminar, os compósitos de FC/Primospire revelam um valor muito mais elevado do que os de FC/PP, provavelmente devido às melhores propriedades mecânicas que a matriz de Primospire apresenta. As experiências já realizadas no equipamento de pultrusão permitem concluir ser possível produzir perfis em boas condições a partir da maioria das matrizes termoplásticas disponíveis comercialmente, usando uma velocidade de puxo de cerca de 0,3 m/min. Foi possível otimizar a produção de perfis obtidos por pultrusão e de towpregs de FC/PP, através da aplicação da metadologia Taguchi, alcançando condições operatórias ótimas. A adição do agente compatibilizante (1% de anidrido maleico) não melhorou o teor mássico de polímero nos towpregs e as propriedades mecânicas nos compósitos produzidos. ■

the major commercial engineering structural applications.

Concerning the interlaminar shear tests, the CF/Primospire composites shown a much higher value than CF/PP probably due to the better mechanical properties that the Primospire matrix exhibits. The tests made using a proprietary pultrusion equipment already allow the conclusion to be possible to produce in good conditions profiles from almost all commercial available thermoplastic matrix pre impregnated raw-materials using pull speeds of about 0.3 m/min. It was possible to optimize the production of CF/PP pultruded profiles and towpregs, through the use of Taguchi method, achieving optimal conditions. The addition of the compatibilizing agent (1% maleic anhydride) did not improve the polymer mass content in towpregs and the mechanical properties on the final composites. ■

REFERÊNCIAS | REFERENCES

[1] Sanjay Mazumdar, High Performance Composites, (May 2012).

[2] Bechtold G., Wiedmer S., Friedrich K., J. Thermoplast. Compos. Mater., 15, 443-465 (2002).

[3] Nguyen-Chung, T., Friedrich, K. and Mennig, G., Reserch Letter in Materials Science, 2007.

[3] J. F. Silva, J. P. Nunes, F. W. Van-Hattum, C. A Bernardo and A. T. Marques "Improving Low-Cost Continuous Fibre Thermoplastic Composites by Tailoring Fibre-Matrix Adhesion". International Workshop on Thermoplastic Matrix Composites, 11-12 September, Gallipoli, Italy, 2003.

[4] Åström T., Carlsson A., Compos. Part A: Appl. Sci. Manuf., 29A, 585-593 (1998).

[5] Miller, A. H., Dodds, N., Hale, J.M., Gibson, A. G., Compos. Part A: Appl. Sci. Manuf., 29A, 773-782 (1998).

[6] Nunes, J. P., Silva, J. F., van Hattum, F.W. J., Bernardo, C. A., Marques, A. T., Brito, A. M. e Pouzada, A. S., Production of Thermo-plastic Towpregs and Towpreg-based Composites in "Polymer Composites – From Nano- to Macro-Scale", Eds K. Friedrich, S. Fakirov and Z. Zhang, Eds Kluwer Academic Publishers, 2005.

[7] Ramani, K., Borgaonkar, H., Hoyle, C., Composites Manufactu-ring, 6, 35-43 (1995).

[8] Sala, G., Cutolo, D., Compos. Part A: Appl. Sci. Manuf., 28A, 637-646 (1997).

[9] Purnima, D., Maiti, S. N., Gupta A. K.., J. Appl. Polym. Sci., 102 (6), 5528–5532 (2006).

[10] Oever, M. and Peijs, T., Compos. Part A: Appl. Sci. Manuf., 29 (3), 227-239 (1998).

[11] Kim, H.-S., Lee, B.-H., Choi, S.-W., Kim, S., Kim, H.-J., Com-pos. Part A: Appl. Sci. Manuf., 38, 1473 1482 (2007).

[12] Janevski, A., Bogoeva-Gaceva, G. and Mader, J. Adhes. Sci. Technol., 14 (3), 363-380 (2000).

[13] Nunes, J. P., Silva, J. F. and Marques, A.T., "Using additives to improve the properties of composites made from towpregs", Proceed-ings of ANTEC'05, Boston, USA, May 1-5 (2005).

[14] R. F. Silva, J. F. Silva, J. P. Nunes, C. A. Bernardo and A. T. Marques, Mater. Science Forum, 587-588, 246-250 (2008).

[15] Fazenda, R., Silva, J. F., Nunes, J. P., Bernardo, C. A., New Coating Equipment To Produce Long Fibre Thermoplastic Matrix Towpregs at Industrial Scale, Proceedings of ANTEC'07, Cincinnati, Ohio/USA, May 6-10 (2007).

[16] P. J. Novo, J. F. Silva, J. P. Nunes, F. W. J. van Hattum, A. T Marques, "Development of a new pultrusion equipment to manufac-ture thermoplastic matrix composite profiles", ECCM 15, June 24-28, Venice, Italy, 2012.

[17] J. P. Nunes, J. F. Silva, P. J. Novo, Adv. Polym. Technol., 32 (S2), E302-E312 (2013).