

热空气作用下 FM-2D 橡胶材料 老化本构模型研究

陈杰¹, 李彪^{1*}, 唐庆云², 张腾³, 李亚智¹

(1.西北工业大学 航空学院, 西安 710072; 2.工业与信息化部电子五所, 广州 510000;
3.空军工程大学 航空工程学院, 西安 710038)

摘要: **目的** 建立热空气作用下氟醚-2D (FM-2D) 橡胶材料的老化本构模型, 形成老化作用下橡胶材料力学响应分析方法, 为准确评估橡胶密封件使用寿命提供依据。**方法** 探究热空气作用下 FM-2D 橡胶材料老化机理, 基于连续介质有限变形理论框架, 采用热力学耗散势函数法, 引入橡胶老化过程的势能函数, 据此建立考虑橡胶材料老化的超弹性本构模型, 基于橡胶老化试验, 完成本构模型参数标定, 实现老化作用下橡胶力学响应的预测。**结果** 建立了热空气作用下橡胶材料的老化本构模型, 依据老化试验数据标定模型参数, 分析了热空气作用下橡胶材料本构模型的可靠性。**结论** 建立的热空气作用下橡胶材料的老化本构模型可准确预测橡胶随老化时间演变的力学响应, 有效模拟了橡胶材料的老化过程。

关键词: 橡胶; 超弹性; 热空气; 老化; 力学响应; 本构模型; 应变张量

中图分类号: TJ04 文献标识码: A 文章编号: 1672-9242(2023)12-0078-07

DOI: 10.7643/issn.1672-9242.2023.12.010

Constitutive Modeling of FM-2D Rubber Materials Subject to Hot Air Aging

CHEN Jie¹, LI Biao^{1*}, TANG Qing-yun², ZHANG Teng³, LI Ya-zhi¹

(1. School of Aeronautics, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China;
2. Electronic Fifth Institute of the Ministry of Industry and Information Technology, Guangzhou 510000, China;
3. School of Aeronautical Engineering, Air Force Engineering University, Xi'an 710038, China)

ABSTRACT: This study aims to establish a constitutive model for rubber materials undergoing hot air aging, emphasizing the development of a mechanical response analysis method applicable for assessing the service life of rubber seals. Employing the finite deformation theory within the framework of continuous mechanics, the method incorporates the thermodynamic dissipation potential function. The potential energy function representing the rubber aging process is introduced, leading to the formulation of a hyperelastic constitutive model that accounts for the effects of rubber material aging. To validate the model, rubber aging tests were conducted, and the model parameters were calibrated based on the experimental results. Application of the developed constitutive model to FM-2D rubber material demonstrated its efficacy in accurately predicting the evolution of me-

收稿日期: 2023-11-15; 修订日期: 2023-12-12

Received: 2023-11-15; Revised: 2023-12-12

基金项目: 国家自然科学基金 (12072272); 国家科技重大专项 (J2019-I-0016-0015)

Fund: National Natural Science Foundation of China (12072272); National Science and Technology Major Project (J2019-I-0016-0015)

引文格式: 陈杰, 李彪, 唐庆云, 等. 热空气作用下 FM-2D 橡胶材料老化本构模型研究[J]. 装备环境工程, 2023, 20(12): 78-84.

CHEN Jie, LI Biao, TANG Qin-yun, et al. Constitutive Modeling of FM-2D Rubber Materials Subject to Hot Air Aging[J]. Equipment Environmental Engineering, 2023, 20(12): 78-84.

*通信作者 (Corresponding author)

chanical responses under conditions of hot air aging. This model serves as a valuable tool for evaluating the durability of rubber seals and contributes to a more comprehensive understanding of the aging dynamics in rubber materials.

KEY WORDS: rubber; hyperelasticity; hot air; aging; mechanical response; constitutive model; strain tensor

橡胶密封件对保证发动机的性能、可靠性和安全性至关重要^[1-2]。密封橡胶件在服役过程中, 受到高温、机械载荷以及环境介质的长期作用, 极易发生橡胶材料力学性能退化, 分子链的位移、断裂和交联变化使得橡胶件逐渐变硬, 拉伸强度降低, 进而失去弹性, 严重老化下甚至会出现橡胶件龟裂, 显著缩短其寿命, 泄漏率增大。若橡胶件因老化而提前失效, 将缩短航空发动机的维护检修周期和翻修期, 对航空发动机的出勤率、可靠性和安全性产生影响, 制约航空发动机的长寿命指标。

热空气老化是橡胶密封件的典型失效模式之一^[3-4]。热空气环境下, 橡胶密封件受到高温、氧化、机械力等因素的共同作用, 高温下的氧化反应、热力学变化等使得橡胶材料发生劣化, 复杂的力热耦合受载易导致橡胶件发生不可逆变形, 最终因密封接触部位接触压力退化而导致密封功能失效。一般地, 橡胶材料的老化失效分为物理老化失效和化学老化失效^[5-8]。实际应用中, 材料往往处于物理和化学的共同作用状态, 在不同的载荷环境工况下, 橡胶的老化机理和性能演变规律不同^[9-11]。近年来, 国内外学者对橡胶材料的热空气老化机理、老化寿命影响规律等开展了研究^[12]。陈芳芳等^[13]开展了橡胶在施加预载受力状态下的热氧老化试验, 利用热空气老化理论对氟橡胶和氟醚橡胶在高温下的老化寿命进行了预测。欧阳飞等^[14]开展了老化时间及老化温度对橡胶力学性能的影响分析。杨睿等^[15]通过动态力学分析研究了氟橡胶及全氟醚橡胶的热空气老化性能, 并结合常规拉伸性能测试对动态力学分析结果进行了验证。现有研究对橡胶材料热空气老化作用下的力学性能、表面及断口形貌、元素含量、热稳定性、化学分子结构等微观方面已有充分认识, 但大多局限于橡胶老化后的失效表征与分析, 对老化作用下橡胶材料的力学分析方法、老化性能预测模型等方面研究不足。

建立橡胶材料的老化本构模型, 是开展老化作用下橡胶材料力学性能演变分析的基础。在不考虑老化作用情况下, 已有大量针对橡胶材料的本构模型被相继提出。Beda^[16]总结了 29 个橡胶类材料的唯象学超弹性本构模型, 并解释了一些经典本构模型的推导过程, 如 Takamizawa-Hayash 模型、Hart-Smith 模型、Gent 模型和 Beda 模型。Dal 等^[17]利用多目标优化参数识别工具箱对 40 个超弹性本构模型的试验数据的再现性进行了回顾。Ding 等^[18]展示了 31 个超弹性本构模型的推导关系, 包括唯象学本构模型和统计力学模型。此外, 利用决定系数和模型间的误差距离, 给

出了不同模型的相似性和定量等价性。现有模型方法有效解决了应力-应变响应问题, 实现了对应变、应力分布高精度数值结果的获得。然而, 大部分工作主要关注对不同应力-应变响应的模拟^[19-22], 在对老化作用下本构模型方面的研究还有待完善。

为此, 本文开展热空气作用下氟醚-2D (FM-2D) 橡胶材料老化本构模型研究。基于橡胶材料老化失效原理, 从唯象学角度, 构建了橡胶热空气老化的本构模型, 基于热空气环境老化和载荷变形老化试验, 标定获得老化本构模型参数, 对比了老化试验数据与理论计算数据, 实现了对热空气老化下 FM-2D 应力-应变的预测, 为综合研究老化对橡胶力学性能的影响规律提供支撑。

1 热空气作用下老化机理及本构模型

1.1 老化机理分析

氟醚橡胶是指在侧链上引入了醚键的氟橡胶, 醚键能够增加氟碳分子的柔顺性, 并降低玻璃化转变温度 (t_g), 不仅保留了氟橡胶良好的耐热、耐介质、耐化学试剂和力学性能, 还改善了普通氟橡胶的耐低温性能。FM-2D 在空气中的工作温度为 $-40\sim 250\text{ }^\circ\text{C}$ 、航空油料中为 $-40\sim 180\text{ }^\circ\text{C}$, 对于某些使用部位, 温度可低于 $-40\text{ }^\circ\text{C}$, 或高于 $250\text{ }^\circ\text{C}$ 。氟醚橡胶可在 $-55\sim 200\text{ }^\circ\text{C}$ 的空气、石油基滑油、燃油和液压油、硅酸酯和双酯类合成滑油中工作。

橡胶材料作为高分子聚合物材料的一类, 若其表征形状变化的弹性常数远高于表征体积变化的弹性常数, 在计算超弹性材料的应力-应变关系时, 可视作微可压缩的超弹性材料。橡胶材料的老化机制主要分为物理老化、化学老化、热老化和光老化等, 这些老化现象通常是相互关联的, 给定的橡胶件可能同时受到多种老化机制的影响。此外, 材料在不同应用环境下的老化行为也可能有所不同。FM-2D 橡胶的热空气老化机制以物理老化和热老化为主, 最终导致橡胶材料的性质发生变化, 包括硬度、强度、弹性恢复能力的降低以及形状变化等。

从唯象学角度看, 橡胶材料所代表的高分子聚合物网络材料, 其物理老化和热老化主要导致材料网络的位移、断裂和交联, 其热空气老化的网络退化过程可以用 2 种竞争机制来描述: 一是高分子网络在纯环境作用下的退化过程, 即材料按照某一个形状保持不变时的老化过程; 二是高分子网络在载荷变形下的改造过程, 即试样由于形状的持续变化而导致的老化过程。

1.2 本构模型

作为微可压缩的超弹性材料,橡胶材料的变形可分为体积变形和等容变形,则变形梯度 F 可表示为 $F = F_{\text{vol}} \cdot F_{\text{iso}}$, 即变形梯度是其等容部分 (isochoric) F_{iso} 与体积部分 (volumetric) F_{vol} 之积,二者分别对应不可压缩变形和可压缩变形,则 Helmholtz 自由能势函数可解耦为式 (1)。

$$\begin{aligned}\psi(\varepsilon, q_d, q_r) &= \psi_{\text{iso}}(\varepsilon, q_d, q_r) + \psi_{\text{vol}}(\varepsilon) \\ \psi_{\text{iso}}(\varepsilon, q_d, q_r) &= \psi_o(\varepsilon) + \psi_{\text{env}}(\varepsilon, q_d) + \psi_{\text{load}}(\varepsilon, q_r)\end{aligned}\quad (1)$$

式中: ψ 为总自由能势; ψ_{iso} 为不可压缩的自由能势; ψ_{vol} 为可压缩的自由能势; ψ_o 为无老化作用下不可压缩自由能势; ψ_{env} 为环境作用下网络退化自由能势; ψ_{load} 为载荷变形作用下网络改造自由能势。对于不可压缩部分,自由能势函数可采用 Mooney-Rivlin (M-R) 和 Yeoh 等 2 种形式给出其应变能方程。

1) 基于 M-R 的应变能方程。Mooney-Rivlin 模型是一种简单的双项式模型,只需要 2 个材料参数即可描述橡胶材料的应力-应变关系,并且模型的参数可以通过试验数据进行拟合,得到较好的拟合结果。但 Mooney-Rivlin 模型无法描述大应变效应,模型参数对应变范围敏感,需要针对不同应变范围进行参数拟合,使得模型的适用性受到限制。见式 (2)~(4)。

$$\psi_o^{\text{M-R}} = c_{10}(\bar{I}_1 - 3) + c_{01}(\bar{I}_2 - 3) \quad (2)$$

$$\psi_{\text{env}}^{\text{M-R}} = d_{10}(\bar{I}_1 - 3) + d_{01}(\bar{I}_2 - 3) \quad (3)$$

$$\psi_{\text{load}}^{\text{M-R}} = r_{10}(\bar{I}_1 - 3) + r_{01}(\bar{I}_2 - 3) \quad (4)$$

式中: $\psi_o^{\text{M-R}}$ 是无老化作用下的自由能势函数; $\psi_{\text{env}}^{\text{M-R}}$ 是环境老化作用下的自由能势函数; $\psi_{\text{load}}^{\text{M-R}}$ 是载荷变形作用下的自由能势函数; \bar{I}_1 、 \bar{I}_2 为不可压缩的应变张量的第一不变量和第二不变量; c_{ij} 为无老化作用下的模型参数; d_{ij} 为环境老化作用下的网络退化模型参数; r_{ij} 为载荷变形作用下的网络改造模型参数。

2) 基于 Yeoh 的应变能方程。Yeoh 模型需要更多的参数来描述橡胶材料的应力-应变关系,相对于 Mooney-Rivlin 模型而言更为复杂,需要更多的试验数据和计算成本,见式 (5)~(7)。

$$\psi_o^{\text{Yeoh}} = \bar{W} = c_{10}(\bar{I}_1 - 3) + c_{20}(\bar{I}_1 - 3)^2 + c_{30}(\bar{I}_1 - 3)^3 \quad (5)$$

$$\psi_{\text{env}}^{\text{Yeoh}} = d_{10}(\bar{I}_1 - 3) + d_{20}(\bar{I}_1 - 3)^2 + d_{30}(\bar{I}_1 - 3)^3 \quad (6)$$

$$\psi_{\text{load}}^{\text{Yeoh}} = r_{10}(\bar{I}_1 - 3) + r_{20}(\bar{I}_1 - 3)^2 + r_{30}(\bar{I}_1 - 3)^3 \quad (7)$$

式中: ψ_o^{Yeoh} 为无老化作用下的自由能势函数; $\psi_{\text{env}}^{\text{Yeoh}}$ 为环境老化作用下的自由能势函数; $\psi_{\text{load}}^{\text{Yeoh}}$ 为载荷变形作用下的自由能势函数。

对于超弹性材料自由能势函数的可压缩部分可表示为:

$$\psi_{\text{vol}} = \frac{1}{d_1}(J-1)^2 \quad (8)$$

式中: J 为变形后与变形前的体积比; d_1 为模型参数。

综上所述,当考虑环境和载荷变形的老化影响时,材料的总自由能势函数可表示为:

$$\begin{aligned}\psi^{\text{M-R}} &= \psi_o^{\text{M-R}} + \psi_{\text{env}}^{\text{M-R}} + \psi_{\text{load}}^{\text{M-R}} = (c_{10} + d_{10} + r_{10})(\bar{I}_1 - 3) + \\ &(c_{01} + d_{01} + r_{01})(\bar{I}_2 - 3) + \frac{1}{d_1}(J-1)^2\end{aligned}\quad (9)$$

$$\begin{aligned}\psi^{\text{Yeoh}} &= \psi_o^{\text{Yeoh}} + \psi_{\text{env}}^{\text{Yeoh}} + \psi_{\text{load}}^{\text{Yeoh}} = (c_{10} + d_{10} + r_{10}) \\ &(\bar{I}_1 - 3) + (c_{20} + d_{20} + r_{20})(\bar{I}_1 - 3)^2 + \\ &(c_{30} + d_{30} + r_{30})(\bar{I}_1 - 3)^3 + \frac{1}{d_1}(J-1)^2\end{aligned}\quad (10)$$

对于热空气作用下 FM-2D 橡胶材料的力学性能,其受老化作用的材料弹性模量参数可表示为 C_{ij} , 可将其解耦为如下 3 个部分:无老化作用下的材料弹性模量 $C_{ij,o}$ 、网络退化的材料弹性模量 D_{ij} 、网络改造的材料弹性模量 R_{ij} , 即 $C_{ij} = C_{ij,o} + D_{ij} + R_{ij}$ 。该分解方式可以实现对老化过程的解耦,便于更好地描述和计算橡胶材料的老化过程。对于各向同性超弹性材料,柯西应力张量可表示为:

$$\sigma = J^{-1} \cdot \tau = J^{-1} \cdot F \cdot S \cdot F^T = 2J^{-1} F \cdot \frac{\partial \psi(C)}{\partial C} \cdot F^T \quad (11)$$

式中: τ 为第二类 Kirchhoff 应力张量, S 为第一类 Kirchhoff 应力张量。以 Mooney-Rivlin 模型为例,将式 (11) 进行求导运算,代入式 (9), 可得到整体柯西应力张量以及材料的整体瞬时切线刚度张量增量:

$$\begin{aligned}\sigma(\mathbf{B}, q_d, q_r) &= 2J^{-1} \\ &\left\{ \frac{\partial \bar{\psi}}{\partial \bar{I}_1} \left(\bar{\mathbf{B}} - \frac{1}{3} \bar{I}_1 \mathbf{I} \right) + \frac{\partial \bar{\psi}}{\partial \bar{I}_2} \left[-\frac{2}{3} \bar{I}_2 \mathbf{I} + (\bar{I}_1 \bar{\mathbf{B}} - \bar{\mathbf{B}}^2) \right] \right\} + \frac{2(J-1)}{d_1} \mathbf{I} \\ \mathbf{C}^{\text{MJ}} &= 2J^{-1} \frac{\partial \bar{\psi}}{\partial \bar{I}_1}\end{aligned}\quad (12)$$

式中: $\bar{\mathbf{B}}$ 为不可压缩左柯西格林应变张量; $\mathbf{1}$ 为一阶向量; \mathbf{I} 为单位张量; $\text{dev}(A) = (I - 1/3 \cdot \mathbf{1} \otimes \mathbf{1}) : A$, 对称四阶并矢乘积表示为 $(A \odot B)_{ijkl} = (A_{ik} B_{jl} + A_{il} B_{jk}) / 2$ 。对于 Mooney-Rivlin 模型,由式 (9) 求导可得,无老化时的材料参数为 $\partial \bar{\psi} / \partial \bar{I}_1 = c_{10}$, $\partial \bar{\psi} / \partial \bar{I}_2 = c_{01}$; 在环境老化条件下,热空气老化的材料参数表示为

$\partial \bar{\psi} / \partial \bar{I}_1 = c_{10} + d_{10}$, $\partial \bar{\psi} / \partial \bar{I}_2 = c_{01} + d_{01}$; 在载荷变形老化条件下, 材料参数表示为 $\partial \bar{\psi} / \partial \bar{I}_1 = c_{10} + d_{10} + r_{10}$, $\partial \bar{\psi} / \partial \bar{I}_2 = c_{01} + d_{01} + r_{01}$ 。同理, 可获得 Yeoh 模型相应的热空气老化过程的材料参数。

为获得橡胶材料热空气老化本构模型式 (12) 中的相关材料参数, 根据橡胶材料 Kirchoff 应力张量和格林应变张量的关系, 在单轴压缩试验条件下获得试样的压缩载荷和压缩率, 进而可以得到不可压缩橡胶材料的真实主应力 τ_1 和主压缩率 λ_1 的关系 ($\lambda_1 = 1 + \varepsilon_1$)。当 $\lambda_1 = 1$ 时, 表示材料无应变。对于单轴压缩过程, $\tau_2 = 0$, $\tau_3 = 0$, $\lambda_2^2 = \lambda_3^2 = 1 / \lambda_1$, $I_1 = \lambda_1^2 + 2 / \lambda_1$, 则真实主应力可表示为:

$$\tau_1 = 2 \left(\lambda_1^2 - \frac{1}{\lambda_1} \right) \left(\frac{\partial \bar{\psi}}{\partial I_1} + \frac{1}{\lambda_1} \frac{\partial \bar{\psi}}{\partial I_2} \right) \quad (13)$$

通过开展常温压缩试验、无应力载荷条件下的热空气老化试验以及恒定应变条件下的热空气老化试验, 通过公式 $\varepsilon_{\text{true}} = \ln(1 + \varepsilon_{\text{eng}})$ 和 $\sigma_{\text{true}} = \sigma_{\text{eng}}(1 + \varepsilon_{\text{eng}})$ 将工程应力-工程应变关系转化为真实应力-真实应变关系, 从而获得老化前、后橡胶材料的真实应力应变曲线, 进而采用控制变量法对曲线进行拟合, 获得橡胶材料热空气老化本构模型参数。

2 热空气老化试验以及结果分析

2.1 热空气老化试验

选取 FM-2D 橡胶材料, 针对其服役工作温度和加速老化试验的极限条件, 选取 5 个温度开展热空气老化压缩试验, 试验温度拟定为 170、190、200、210、220 °C。压缩试验样采用 GB/T 7759—2009 中的圆柱形试样, 直径为(29.0±0.5) mm, 高度为(12.5±0.5) mm, 如图 1a 所示。

开展 2 类老化试验:

1) 无应力加载的环境老化。试验过程中, 将试样直接放入高温老化试验箱, 经过 3、7、11、21、

27、31 d, 170、190、200、220 °C 的热空气老化试验。

2) 持续压缩加载 (主压缩率 $\lambda_1 = 0.75$) 的载荷变形老化。试验过程中, 将试样放入专用压缩夹具, 通过夹具刻度调节压缩载荷变形, 将夹具放入高温老化试验箱, 经过 3、7、11、21、27、31 d, 170、190、200、220 °C 的热空气老化试验。

在上述老化试验 (如图 1b 所示) 完成后, 通过对老化后的试验件进行压缩试验, 获得随时间、温度的变化的应力应变曲线。



图 1 试样结构与老化试验
Fig.1 Sample structure and aging test diagram

2.2 橡胶老化力学性能变化

热空气老化试验压缩试验件在主压缩率 $\lambda_1 = 0.9$ 时的压缩模量见图 2。可以发现, 在环境老化作用下, 试验件的压缩模量总体呈现波动下降趋势。老化温度不超过 200 °C 时, $\lambda_1 = 0.9$ 时的压缩模量在 0.6 MPa 左右变化。老化温度超过 200 °C, $\lambda_1 = 0.9$ 时的压缩模量有明显下降趋势。在 $\lambda_1 = 0.75$ 的载荷变形老化作用下, $\lambda_1 = 0.9$ 时的压缩模量呈现明显下降趋势, 并且随着老化温度的提高, 下降幅度明显增大。

热空气老化试验压缩试验件的主应力-主压缩率曲线见图 3。由于主压缩率与横截面积正相关, 因此主应力-主压缩率曲线的斜率与压缩弹性模量也正相关。可以发现, 在环境老化作用下, 试验件的压缩模量总体有略微的下降趋势。在老化温度为 170 °C

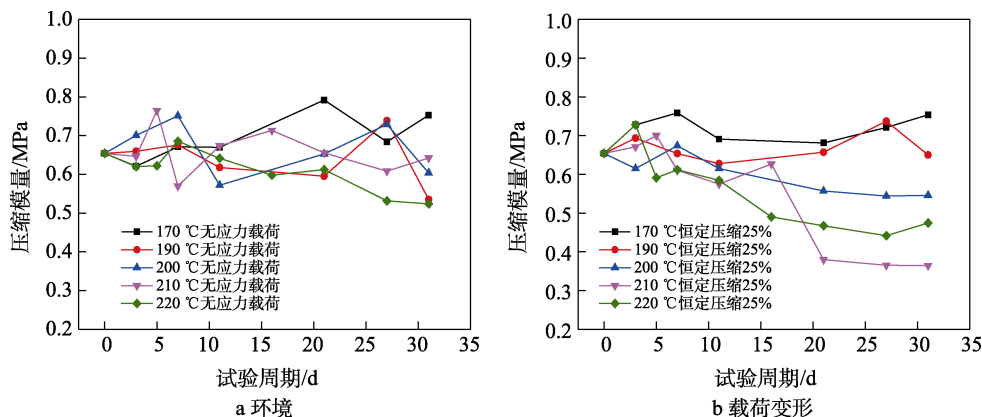


图 2 0.9 主压缩率时环境和载荷变形对压缩模量的影响

Fig.2 Compression modulus at $\lambda_1 = 0.9$ under the influences of hot aging environment (a) and mechanical load (b)

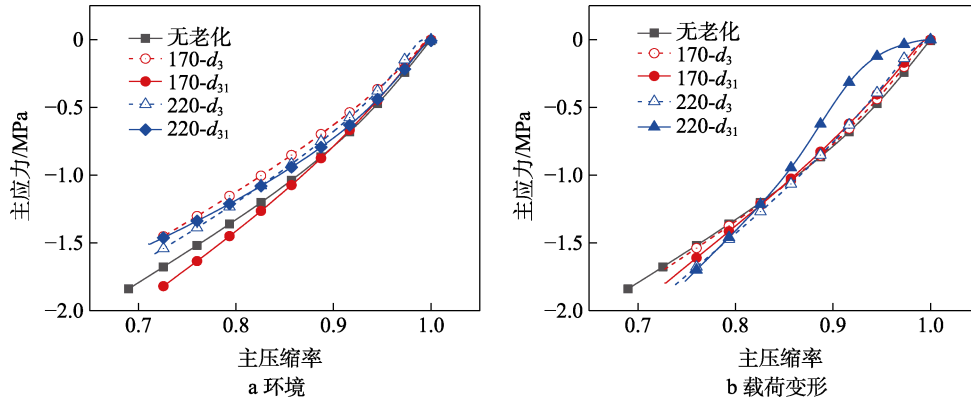


图3 环境和载荷变形对主应力-主压缩率的影响曲线

Fig.3 Effect of environment (a) and load deformation (b) on principal stress-principle compression ratio

时，随着老化时间的增加，材料的压缩模量逐渐上升；老化温度为 220 °C 时，老化速度较快，随着时间的推移，压缩模量变化较小。在载荷变形作用下，试验件的压缩模量整体上均显示出上升的趋势，老化时间对模量的影响不明显。在老化温度为 220 °C 时，随着压缩率变小，试验件的压缩模量呈现由小逐渐增大的趋势。

2.3 本构模型参数标定方法

本文考察了 Mooney-Rivlin 模型以及 Yeoh 模型的预测效果。为确定本构模型参数，结合式 (13)，采用控制变量对不同老化试验下试样的应力-应变曲线进行拟合获得参数。在获取 Mooney-Rivlin 模型参数时，首先基于常温压缩试验获得的材料真实应力-应变曲线，拟合出基本材料参数 c_{10} 和 c_{01} ；其次，基于热空气无应力载荷老化试验获得的材料真实应力-应变曲线，拟合出环境影响的材料参数 d_{10} 和 d_{11} ；然后，基于热空气变形载荷老化试验获得的材料真实应力-应变曲线，拟合出变形影响的材料参数 r_{10} 和 r_{01} 。Yeoh 模型参数的获取方法与上述过程类似。

170、220 °C 的热空气老化条件下，基于 Mooney-Rivlin 的老化本构模型的参数见表 1。基于 Yeoh 的老化本构模型的模型参数见表 2，本构模型拟合材料热空气老化时的真实应力-应变曲线如图 4、图 5 所示。

由图 4、图 5 可见，Mooney-Rivlin 模型以及 Yeoh 模型构建的橡胶材料热空气老化模型可以有效地模拟老化试验过程中的真实主应力-主压缩率曲线。考虑到两模型的相关性较好，老化试验过程存在不可避免的试验误差，老化试验获得的主应力-主压缩率曲线与模型拟合出的主应力-主压缩率曲线较为符合。在环境老化作用下，Mooney-Rivlin 模型以及 Yeoh 模型均可有效模拟出 FM-2D 橡胶材料的真实主应力-主压缩变化趋势。在载荷变形老化作用下，由于 220 °C 的真实主应力-主压缩曲线的变化趋势较大，Mooney-Rivlin 模型的拟合效果相较于 Yeoh 模型更好。当压缩率较大时，材料变形较大，Yeoh 模型的真实主应力-主压缩曲线变化趋势模拟效果较差，可选用更符合大变形的基于分子链网络的微观统计热力学模型的应变能函数方程，例如 Gaussian 模型。

表 1 Mooney-Rivlin 本构模型参数

Tab.1 Mooney Rivlin constitutive model parameters

老化环境	c_{10}	c_{01}	d_{10}	d_{01}	r_{10}	r_{01}
170- d_3	1.389 2	-0.319 41	0.194 84	-0.111 41	-0.401 84	0.215 1
170- d_{31}	1.389 2	-0.319 41	-0.015 67	-0.129 27	-0.191 33	0.232 96
220- d_3	1.389 2	-0.319 41	-0.185 56	-0.982 59	0.079 33	0.121 97
220- d_{31}	1.389 2	-0.319 41	0.058 26	-0.129 11	2.668 5	2.549 3

表 2 Yeoh 本构模型参数

Tab.2 Yeoh constitutive model parameters

老化环境	c_{10}	c_{20}	c_{30}	d_{10}	d_{20}	d_{30}	r_{10}	r_{20}	r_{30}
170- d_3	0.989 92	-1.089 8	1.634 3	0.030 69	-0.064 22	-0.343 12	-0.168 71	2.817 2	-7.743 3
170- d_{31}	0.989 92	-1.089 8	1.634 3	-0.201 19	0.006 25	-0.250 04	0.019 75	1.530 1	-5.492 3
220- d_3	0.989 92	-1.089 8	1.634 3	-0.035 97	-0.201 05	0.618 6	0.244 31	-0.507 63	-2.298 6
220- d_{31}	0.989 92	-1.089 8	1.634 3	-0.053 91	-1.148 4	2.058 7	0.228 22	16.734	-45.113

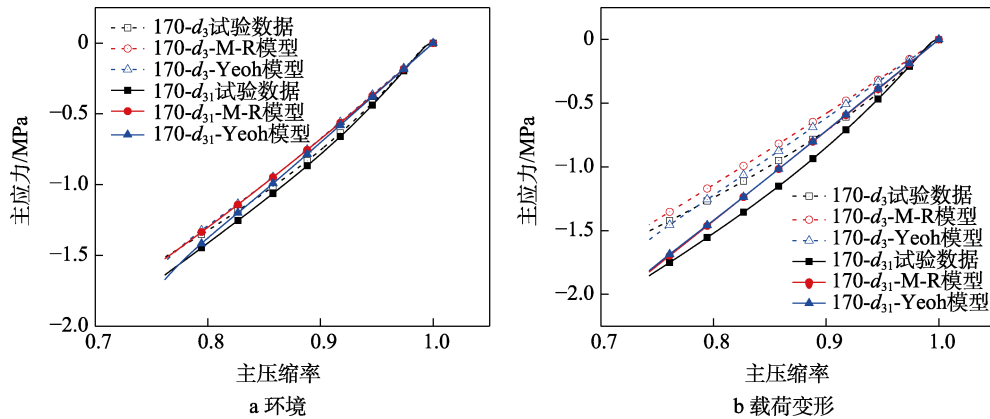


图 4 170 °C 下环境、载荷变形影响的本构方程拟合曲线

Fig.4 Constitutive equation fitting curve of environmental impact (a) and load deformation impact (b) at 170 °C

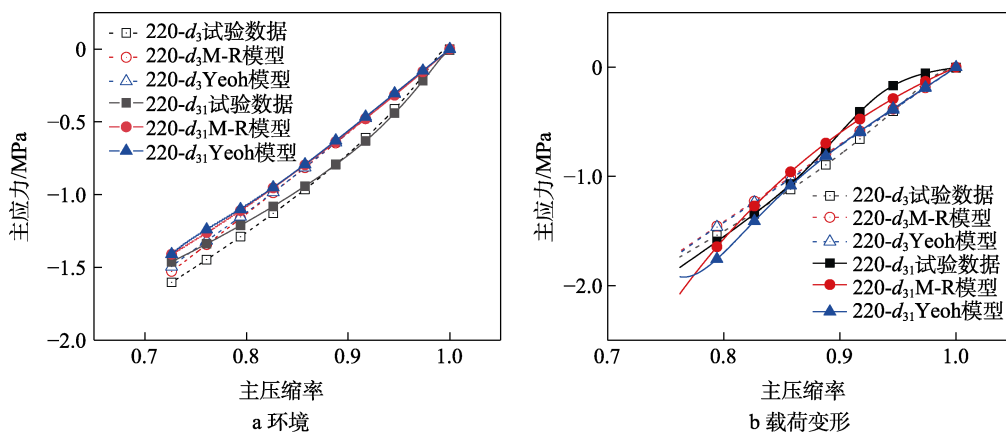


图 5 220 °C 下环境影响(a)、载荷变形影响(b)的本构方程拟合曲线

Fig.5 Constitutive equation fitting curve of environmental impact (a) and load deformation impact (b) at 220 °C

3 结论

热空气老化法的深入研究和应用对装备可靠性的提高和装备的维护具有重要意义。本文研究了橡胶材料的老化机理,建立了橡胶材料的老化本构模型,并通过开展老化试验,确定了 FM-2D 橡胶材料的老化本构模型材料参数。

1) 在连续介质有限变形理论框架下,基于经典 Mooney-Rivlin 和 Yeoh 应变能密度函数模型,可建立橡胶材料的老化本构模型,实现对不同老化环境主应力-主压缩率曲线的准确预测。仍有很多待完善之处,可深入探究老化本构模型材料参数与时间、温度的关系,得出更佳有效的老化本构模型。

2) 试验结果表明,FM-2D 橡胶材料在热空气环境下会发生老化。当环境温度低于 200 °C 时,压缩模量变化不明显,老化现象不明显;当环境温度超过 200 °C 时,压缩模量明显下降,老化现象逐渐明显,压缩模量随老化温度升高和老化时间的延长而发生显著衰减下降。环境影响的退化过程较为明显,载荷变形影响的改造过程随温度的升高和老化时间的增加而更加明显。

3) 通过对老化本构模量的拟合、分析可以得出,试验结果与模拟结果具有较好的线性关系和相关性。Mooney-Rivlin 模型以及 Yeoh 模型对无老化和环境老化试验结果的拟合效果较好,对载荷变形老化的试验结果拟合存在一些误差,可进一步研究选择其他橡胶应变能方程模型来提高拟合效果。

参考文献:

[1] 刘璇, 杨睿, 杨文, 等. 丁腈橡胶热氧老化过程结构性能关系研究[J]. 合成材料老化与应用, 2020, 49(6): 1-3. LIU X, YANG R, YANG W, et al. Relationship between Structure and Property of Nitrile Rubber during Thermo-Oxidative Aging[J]. Synthetic Materials Aging and Application, 2020, 49(6): 1-3.

[2] 杨睿, 赵文博, 王珍, 等. 氟醚橡胶 O 形密封圈耐航空发动机润滑油性能的研究[J]. 橡胶工业, 2022, 69(1): 50-54. YANG R, ZHAO W B, WANG Z, et al. Study on Aeroengine Lubricating Oil Resistance of Fluoroether Elastomer O-Ring Seal[J]. China Rubber Industry, 2022, 69(1): 50-54.

[3] WU J, DONG J Y, WANG Y S, et al. Thermal Oxidation

- Ageing Effects on Silicone Rubber Sealing Performance[J]. *Polymer Degradation and Stability*, 2017, 135: 43-53.
- [4] WANG H, ZHANG H, ZHANG J H, et al. Improving Tribological Performance of Fluoroether Rubber Composites by Ionic Liquid Modified Graphene[J]. *Composites Science and Technology*, 2019, 170: 109-115.
- [5] 肖琰, 魏伯荣. 天然橡胶硫化胶的热氧老化性能研究[J]. *合成材料老化与应用*, 2006, 35(2): 21-23.
XIAO Y, WEI B R. Analyzing Thermo-Oxidation Aging of NR Vulcanizate by Using Thermal Analysis and PGC-MS[J]. *Synthetic Materials Aging and Application*, 2006, 35(2): 21-23.
- [6] ZHANG F Q, CHEN M, WANG Y Z, et al. Aging Characteristics of NR and Inhibiting Technology[J]. *Special Purpose Rubber Products*, 2011, 32(3): 57-60.
- [7] XIA H H, WANG X K, WU C W. Study on Aging and Method on Shelf-Life Prediction of Rubber Materials[J]. *Journal of Aeronautical Materials*, 2011, 34(1): 219-222.
- [8] 李咏今. 硫化橡胶热氧老化时物理机械性能变质规律的研究[J]. *特种橡胶制品*, 1997, 18(1): 42-51.
LI Y J. Study on Degradation Rule of Physical Mechanical Property of Vulcanizate during the Period of Heat Ageing[J]. *Special Purpose Rubber Products*, 1997, 18(1): 42-51.
- [9] 胡文军, 刘占芳, 陈勇梅. 橡胶的热氧加速老化试验及寿命预测方法[J]. *橡胶工业*, 2004, 51(10): 620-624.
HU W J, LIU Z F, CHEN Y M. Thermal-Oxidative Accelerated Aging Test and Life Prediction Method of Rubber[J]. *China Rubber Industry*, 2004, 51(10): 620-624.
- [10] 陈经盛. 橡胶老化 防护与监测(一)[J]. *化工标准化与质量监督*, 1996, 16(1): 30-32.
CHEN J S. Protection and Monitoring of Rubber Aging (1)[J]. *China Petroleum and Chemical Standard and Quality*, 1996, 16(1): 30-32.
- [11] WANG Z L. Application and Technology of Anti-Aging Agent[J]. *World Rubber Industry*, 2001, 28(1): 55-59.
- [12] MORRELL P R, PATEL M, SKINNER A R. Accelerated Thermal Ageing Studies on Nitrile Rubber O-Rings[J]. *Polymer Testing*, 2003, 22(6): 651-656.
- [13] 陈芳芳, 田文明, 刘巧宾. 聚四氟乙烯表面改性氟橡胶的热空气老化研究[J]. *北华航天工业学院学报*, 2022, 32(1): 7-9.
CHEN F F, TIAN W M, LIU Q B. Heat-Resisting Air Aging of Fluororubber Surface Modified by PTFE[J]. *Journal of North China Institute of Aerospace Engineering*, 2022, 32(1): 7-9.
- [14] 欧阳飞, 黄雪萍, 吴涛, 等. 航空发动机常用橡胶的热空气老化研究[J]. *橡胶科技*, 2022, 20(7): 322-325.
OU YANG F, HUANG X P, WU T, et al. Study on Hot Air Aging of Rubber Commonly Used in Aeroengine[J]. *Rubber Science and Technology*, 2022, 20(7): 322-325.
- [15] 杨睿, 赵文博, 胡鹏飞, 等. 动态力学分析在氟橡胶热空气老化分析中的应用[J]. *合成橡胶工业*, 2021, 44(1): 33-36.
YANG R, ZHAO W B, HU P F, et al. Application of Dynamic Mechanical Analysis in Analysis of Hot Air Aging of Fluoroelastomer[J]. *China Synthetic Rubber Industry*, 2021, 44(1): 33-36.
- [16] BEDA T. An Approach for Hyperelastic Model-Building and Parameters Estimation a Review of Constitutive Models[J]. *European Polymer Journal*, 2014, 50: 97-108.
- [17] DAL H, BADIENIA Y, AÇIKGÖZ K, et al. A Comparative Study on Hyperelastic Constitutive Models on Rubber: State of the Art after 2006[C]// *Proceedings of the 11th European Conference on Constitutive Models for Rubber*. France: CRC Press, 2019.
- [18] DING F, ZHANG H, DING M M, et al. Theoretical Models for Stress-Strain Curves of Elastomer Materials[J]. *Acta Polym Sin*, 2019, 50(12): 1357-1366.
- [19] 刘璇, 杨睿. 橡胶密封材料老化研究进展[J]. *机械工程材料*, 2020, 44(9): 1-10.
LIU X, YANG R. Research Progress on Aging of Rubber Sealing Materials[J]. *Materials for Mechanical Engineering*, 2020, 44(9): 1-10.
- [20] 贺元骅, 张政, 伍毅. 低压环境下航空电缆材料燃烧特性的研究[J]. *塑料科技*, 2020, 48(1): 71-74.
HE Y H, ZHANG Z, WU Y. Experimental Study on Combustion Characteristics of Aviation Cable Materials under Low Pressure Environment[J]. *Plastics Science and Technology*, 2020, 48(1): 71-74.
- [21] ZHOU J, YAO J, HU H H, et al. Accelerated Aging Life Evaluation Method of Silicone Rubber Based on Segmented Nonlinear Arrhenius Model[J]. *Materials Research Innovations*, 2015, 19(sup5): S5-855-S5-860.
- [22] 刘佩凤, 韩铭, 唐保强. 不同橡胶加速退化规律差异性分析[J]. *环境技术*, 2019, 37(5): 44-48.
LIU P F, HAN M, TANG B Q. Difference Analysis of Different Rubber Accelerated Degradation Laws[J]. *Environmental Technology*, 2019, 37(5): 44-48.

责任编辑: 刘世忠