

大型复合材料构件固化变形 分析方法研究进展*

Research Progress of Curing Deformation Analysis Method for Large Composite Structures

西北工业大学航空学院 郑锡涛 刘振东 梁晶



郑锡涛

西北工业大学航空学院教授, 博士生导师, 航空结构工程系主任。长期从事航空复合材料及其结构的力学行为研究与教学工作。主要研究兴趣: 复合材料损伤、湿热效应、结构设计与分析、新型纺织复合材料力学性能宏观分析、试验技术等。主持国家自然科学基金、中航创新基金、航空科学基金、国际合作项目、航空预研课题等 50 余项, 获省部级科技进步奖 5 项, 授权专利 5 项, 主编专著和教材 3 部, 在国内外学术刊物和会议上发表论文 110 余篇。

相对于小型构件, 大型复合材料构件的固化变形量相对较大, 会影响复合材料构件的装配, 使其难以满足无应力装配的要求, 强行装配会产生较大的装配应力, 影响复合材料构件的性能与使用寿命。研究复合材料构件的固化变形, 有利于指导工程应用, 减少固化变形。

DOI:10.16080/j.issn1671-833x.2015.14.032

整体成型的大型复合材料能够减轻结构重量、减少零件数量、降低生产成本与装配成本。然而, 由于材料本身的各向异性、基体的固化收缩效应、构件与模具之间的相互作用等因素, 结构内部将不可避免地产生残余应力, 进而引起复合材料结构件在脱模后产生回弹变形以及翘曲变形。这种固化变形会产生一定的尺寸误差, 从而使复合材料构件无法满足现代飞机无应力装配的要求, 这种现象在大型飞机复合材料构件上尤为明显。为预测并控制这种变形, 国内外学者对复合材料的固化变形进行了大量研究。本文将对影响固化过程的各个因素进行简要分析, 并给出有限元分析方法。

复合材料构件固化过程中的 温度场分析

先进航空复合材料构件采用热压罐工艺成型时, 在升温过程中的热源有 2 个: 外热源(热压罐的加热过程); 内热源(树脂基复合材料固化放热过程)。

1 外部热源对复合材料固化过程中温度场的影响

外热源对固化过程的影响主要表现在热压罐环境温度变化导致模具温度发生改变, 进而影响复合材料构件的温度场。目前, 外热源对复合材料温度场的影响, 主要集中在 2 方面: (1) 热压罐内气体流动传热过程导致的热压罐内部温度场分布; (2)

* 西北工业大学研究生创新创业种子基金项目资助。

模具设计原因导致的模具型面温度场分布情况。

针对热压罐内部温度场分布情况,张铖等^[1]利用计算流体力学中的三维非定常 N-S 方程,以及湍流模型,模拟了热压罐强迫对流换热条件下的温度场分布情况。贾成贵等^[2]经过试验,测得有效工作容积为 $\phi 2.6\text{m} \times 8.0\text{m}$ 的热压罐,实际达到的温度均匀度为 $\pm 2.5^\circ\text{C}$,热压罐空载温度场均匀度较好。针对模具因素导致的型面温度场不均匀,张铖等^[1]研究了热压罐内采用框架式模具进行固化成型时,框架式模具型面上的温度场分布情况。梁宪珠等指出框架式模具升降温快,有利于模具各点温度均匀^[3]。

由于框架式模具各点温度分布较为均匀,国内外学者在分析复合材料固化过程中,往往忽略外部温度场不均匀性,采用固化温度作为温度边界条件施加在复合材料构件上,以此模拟外部热源对复合材料温度场的影响。

2 内部热源对复合材料固化过程中温度场的影响

内热源是由于复合材料在固化过程中,树脂材料发生化学反应释放能量引起的。一般热固性树脂在固化反应中,单位时间内单位体积中的内热源放热量 Φ 与固化反应的进程相关,可以用式(1)表示^[4]:

$$\Phi = \rho_r V_r H_r \frac{d\alpha}{dt}, \quad (1)$$

式中, ρ_r 为树脂的密度; V_r 树脂的体积分; H_r 为树脂的总反应热; $d\alpha/dt$ 为树脂的固化反应速率,其中 α 为树脂的固化度,固化度取值范围为 $\alpha \in [0, 1]$, 0 代表固化反应尚未开始, 1 代表固化反应已经结束。

3 复合材料构件固化过程中的温度场分析

大多数的研究者采用傅里叶热传导控制方程描述复合材料固化过程中的热传导,复合材料构件中的热

平衡方程可以采用式(2)表达。

$$\rho(\alpha, T) C_p(\alpha, T) \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} (k_x \frac{\partial T}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (k_y \frac{\partial T}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (k_z \frac{\partial T}{\partial z}) + \Phi, \quad (2)$$

式中, $\rho(\alpha, T)$ 为密度; $C_p(\alpha, T)$ 为比热容; T 为绝对温度; k_x, k_y, k_z 分别为复合材料沿 x, y, z 方向的导热系数。

固化动力学模型

固化反应动力模型通过数学形式来确定在某时刻或温度下,树脂已转化的物质的量和转化速率之间的关系。目前,国内外学者对固化过程的描述主要分为唯象模型和机理模型^[5]。从工程实践角度出发,唯象模型由于其简易性而广泛应用于有限元模拟计算中。

固化动力学模型多使用 DSC(差示扫描量热)方法获得^[6]。目前,大多数固化动力学模型通过模型拟合法,建立在一些经验模型的基础上,一般用下面的数学模型表示:

$$\frac{d\alpha}{dt} = k(T)f(\alpha), \quad (3)$$

式中, $k(T)$ 为反应速率函数,是温度 T 的函数, $f(\alpha)$ 为固化度 α 的函数。

通常根据 $f(\alpha)$ 的不同可将固化动力学模型分为以下 2 类。

(1) n 级反应动力学模型。 n 级反应动力学模型的特点是固化反应一开始便达到最大固化速率。 n 级反应动力学模型的具体形式为:

$$\frac{d\alpha}{dt} = k(T)(1 - \alpha)^n, \quad (4)$$

式中, $k(T) = A e^{-\frac{\Delta E_a}{RT}}$, A 为频率因子, ΔE_a 为活化能, R 为普适气体常数。

(2) 自催化模型。对于自催化模型,由于存在诱导期,固化速率极值出现在 20%~40% 附近。自催化模型的具体形式为:

$$\frac{d\alpha}{dt} = (k_1 + k_2 \alpha^{m_1})(1 - \alpha)^{n_1}, \quad (5)$$

式中, $k_i = A_i e^{-\frac{\Delta E_{a_i}}{RT}}$ ($i = 1, 2$), k_1 和 k_2

为反应速率常数, A_i 为频率因子, m_1 和 n_1 为反应级数, ΔE_i 为自催化模型的活化能。

材料性能随固化反应的变化

随着固化反应的进行,复合材料的力学性能也会发生变化。目前模拟材料性能随化学反应变化的方式主要有两种:(1)由试验测定在不同的固化阶段下材料的力学性能,并进行拟合;(2)认为纤维性能不变,树脂性能随化学反应变化,然后从微观力学出发拟合复合材料性能。

White 等^[6]针对 AS4/3501-6 在不同固化度阶段下的性能进行了试验测定,认为复合材料的轴向模量 E_{11} 可以采用线性公式拟合,纵向模量 E_{22} 可以以某一固化度为分界线,采用分段函数的形式表达。

Bogetti 等^[7]列出了与固化进程相关的树脂弹性模量表达式:

$$\begin{cases} E_m = E_m^0 & (\alpha < \alpha_{\text{gel}}) \\ E_m = (1 - \alpha_{\text{mod}}) E_m^0 + \alpha_{\text{mod}} E_m^\infty & (\alpha \geq \alpha_{\text{gel}}) \end{cases}, \quad (6)$$

式中,其中 $\alpha_{\text{mod}} = \frac{\alpha - \alpha_{\text{gel}}}{1 - \alpha_{\text{gel}}}$, E_m 为树脂的弹性模量, E_m^0 为树脂未固化时的弹性模量, E_m^∞ 为树脂固化完全时的弹性模量, α_{gel} 为树脂的凝胶点。

随后根据纤维与树脂的性能,采用细观模型对复合材料的力学性能进行拟合。目前,在固化变形分析过程中,常用的细观模型为 Hill-Hashin-Christensen-Lo 模型。

化学收缩对复合材料固化变形的影响

Yoon 等^[8]研究发现化学收缩对复合材料固化变形来说是至关重要的。针对化学收缩的模拟,文献中提供了 2 种方式:(1)将树脂基体化学收缩产生的应变等效地叠加在树脂基体的热膨胀中,通过等效热膨胀系

数实现上述目标;(2)将化学收缩单独计算,在每一个分析步中,作为初始应变添加在模型上。

第一种方法误差较大,等效热膨胀系数难以完全模拟化学收缩,甚至在某一分析步中,在温度不变的情况下,该方法无法模拟可能发生的化学收缩。第二种方式需要将增量步调整的很小,才能较精确模拟化学收缩。本文重点介绍第二种方式。

树脂的化学收缩应变 ε_m^c 可以通过树脂固化度 α 计算^[9]:

$$\varepsilon_m^c = (1 + \beta\alpha)^3 - 1, \quad (7)$$

式中, β 是由试验确定的树脂总体积的收缩,一般取值为 2%~5%。认为纤维在固化过程中不发生化学收缩,复合材料的化学收缩可以根据微观力学模型确定,其中沿着纤维方向和垂直纤维方向的总应变变量分别为:

$$\begin{cases} \varepsilon_1^c = \frac{\varepsilon_m^c E_m (1 - V_f)}{E_f} \\ \varepsilon_2^c = (1 + \mu_m) \varepsilon_m^c (1 - V_f) - \mu_c \varepsilon_1^c \end{cases}, \quad (8)$$

式中, V_f 为纤维体积分数; μ_m 和 μ_c 分别为树脂和复合材料的泊松比; E_m 和 E_f 分别为树脂和纤维的弹性模量。

材料本构方程对复合材料固化变形的影响

分析复合材料固化过程,通常采用的材料本构关系有线弹性模型与粘弹性模型。Prasatya 等^[10]指出粘弹性效应对复合材料的残余应力来说是不可忽视的。郭兆璞等^[11]采用粘弹性模型,计算得到 1 周后的残余应力的平均值比线弹性模型所得应力降低 52%。线弹性模型与粘弹性模型不仅计算所得残余应力与固化变形量不同,甚至会得出相反的结论,例如采用线弹性模型,可以得到层合板的残余应力与降温过程无关,仅与 T_g 与 T 的差值有关^[12];而采用粘弹性模型,则可以得到“采用不等速降温,对降低层合板固化残余应力有利”^[11],因此,在进行复合材料固化变形分析时,应当进行粘弹性分析。

温度对聚合物材料的力学性能有很大的影响,升高温度与延长时间对分子运动和聚合物的粘弹行为能产生等效的效果。这一效应称为聚合物材料的时间-温度等效原理^[4]。

目前广泛采用的复合材料粘弹性模型是广义的 Maxwell 模型,该模型由 $(n-1)$ 个 Maxwell 单元和一个弹簧组成。Kim 等^[13]通过试验测定了温度转换因子 a_T ,利用温度转换因子可以将从温度 T_1 到温度 T_2 对粘弹性材料造成的影响转换到时间刻度上,降低了粘弹性分析难度。转换关系为:

$$\xi = \int_0^t \frac{1}{a_T} dt, \quad (9)$$

式中, ζ 为折算时间。

目前广泛采用的复合材料粘弹性模型是广义的 Maxwell 模型,该模型由 $(n-1)$ 个 Maxwell 单元和一个弹簧组成。Kim 等^[13]对 AS4/3501-6 的粘弹性力学性质进行了研究,给出了由 9 个 Maxwell 单元以及 1 个弹簧单元组成的广义 Maxwell 模型。基于广义的 Maxwell 模型,正交各向异性的复合材料的本构关系为:

$$\sigma_i(t) = \int_0^t \mathbf{Q}_{ij}(\alpha, T, t - \tau) \frac{\partial}{\partial \tau} (\varepsilon_j(\tau) - \varepsilon_j'(\tau) - \varepsilon_j^c(\tau)) d\tau, \quad (10)$$

式中, σ_i 为应力分量, \mathbf{Q}_{ij} 为刚度矩阵, T 为温度, ε_j 为总应变变量, ε_j' 为热应变分量, ε_j^c 为化学应变分量。

当材料在达到某一固化度 α_0 时呈现简单的热-流变性,式(10)可以改写成式(11):

$$\sigma_i(t) = \int_0^t \mathbf{Q}_{ij}(\alpha = \alpha_0, \xi^t - \xi^\tau) \frac{\partial}{\partial \tau} (\varepsilon_j(\tau) - \varepsilon_j'(\tau) - \varepsilon_j^c(\tau)) d\tau, \quad (11)$$

式中, $\mathbf{Q}_{ij}(\alpha, \xi) = \mathbf{Q}_{ij}^\infty(\alpha) + (\mathbf{Q}_{ij}^u(\alpha) - \mathbf{Q}_{ij}^\infty(\alpha)) + \sum_{\omega=1}^N W_m \exp\left(-\frac{\xi(\alpha, T)}{\tau_m(\alpha)}\right)$, \mathbf{Q}_{ij}^∞ 为完全松弛刚度矩阵, \mathbf{Q}_{ij}^u 为初

始刚度矩阵, W_m 为第 m 支 Maxwell 单元的权重系数, τ_m 为第 m 支 Maxwell 单元的离散应力松弛时间。

模具约束作用对复合材料构件固化变形的影响

模具对复合材料构件固化变形的影响主要集中在 2 个方面:(1)模具原因引起的层合板内温度分布梯度;(2)模具和复合材料热膨胀系数差异而引起的相互作用。Satish 在研究模具约束作用时,采用了剪切层来代替模具对复合材料的作用,通过改变剪切层的厚度以及热膨胀系数使模拟结果接近试验值,但是该方法所得的剪切层参数仅对给定的固化压力与结构尺寸下有效^[14]。岳广全^[15]对剪切层进行进一步的研究,建立了剪切层厚度与热膨胀系数对复合材料构件尺寸及固化压力变化的数学模型,扩展了剪切层参数的应用范围,但是依旧需要通过试验获得剪切层参数。根据以往的研究,模具约束作用导致的固化变形仅占 10% 左右^[16],因此多数学者会采用更加简单的边界条件约束来代替剪切层,模拟模具对复合材料构件固化过程的影响。

固化压力对复合材料构件固化变形的影响

固化压力对复合材料固化变形的影响主要体现在以下 2 个方面:(1)固化压力通过改变热压罐中的高温气流流动特性,进而影响复合材料构件的温度场;(2)固化压力通过改变树脂含量以及树脂分布来影响复合材料构件固化变形。

重点讨论改变树脂含量对复合材料构件固化变形量的影响。一方面, Yi 等^[17]研究得到,树脂含量会影响复合材料固化过程的温度场与固化度场分布,同时也会影响复合材料的化学收缩量,进而影响复合材料构件的固化变形。另一方面,压力分布不均匀导致压实不均匀,使各部分

树脂含量不同,甚至造成贫脂区和富脂区,这种不均匀性也会影响构件的固化变形。杨进军^[18]针对纤维树脂分布引起的固化变形进行了研究。

复合材料构件的固化变形分析

基于通用有限元分析软件 ABAQUS 进行二次开发,得到了一套模拟复合材料固化变形的有限元程序,并利用上述程序模拟了 L 型筋条、L 型加筋壁板的固化变形情况。筋条长度为 300mm,凸缘宽度为 20mm,倒角半径为 3mm,铺层厚度为 1mm。筋条的铺层形式为 $[90/-45/0/45/-45/0/45/90]^T$ 。多筋壁板的平板尺寸为 $300\text{mm} \times 200\text{mm} \times 1\text{mm}$,蒙皮铺层形式为 $[90/-45/0/-45/45/0/-45/90]^T$,筋条铺层形式为 $[90/-45/0/-45/45/0/-45/90]^T$ (图 1)。

本文所开发的程序采用 White 等^[6]给出的材料性能比变化趋势,固化动力学模型采用胡照会^[9]给出参数,树脂的固化收缩量采用 3%,并采用式(8)给出的化学收缩量计算形式,对上述试件进行了固化变形的模拟分析。表 1 列出了试件的实际变形量与本文模拟的变形量的对比。

结束语

复合材料构件在航空航天领域取得了广泛的应用。相对于小型构件,大型复合材料构件的固化变形量相对较大,会影响复合材料构件的装配,使其难以满足无应力装配的要求,强行装配会产生较大的装配应力,影响复合材料构件的性能与使用寿命。研究复合材料构件的固化变形,有利于指导工程应用,减少固化变形。

针对复合材料固化变形,国内外

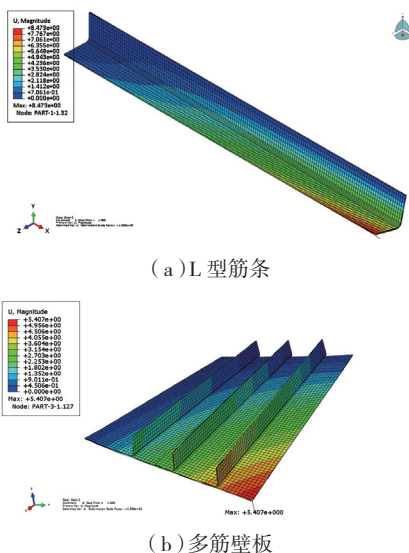


图1 L型筋条与多筋壁板的固化变形形式

学者已经做了大量的研究工作,固化变形的理论基础研究已经较为成熟,但在工程实践中,复合材料构件的固化变形量计算方式尚有待提高。复杂模型分析所得的变形量精度较高,但是计算量巨大,所需参数需要大量试验获得,难以大规模应用,并且通用性较差;简单模型计算速度较快,但误差较大,难以对工程应用产生指导作用。因此,对影响固化变形量的各个因素进行合理的简化,建立一种精度较高,通用性较强,能够广泛应用于工程实践的大型复合材料构件固化变形分析方法是目前亟待解决的问题。

参考文献

- [1] 张铨,梁宪珠,王永贵,等.热压罐工艺环境对于先进复合材料框架式成型模具温度场的影响.材料科学与工程学报,2011(4):547-553.
- [2] 贾成贵,朱振生,王维纲.大型热压罐装置.航空工程与维修,1997(3):38-39.
- [3] 王永贵,梁宪珠,曹正华,等.热压罐工艺成型先进复合材料构件的温度场研究综述.玻璃钢/复合材料,2009(3):81-85.

[4] 王晓霞.热固性树脂基复合材料的固化变形数值模拟[D].济南:山东大学,2012.

[5] 蔡宏洋.低粘度中温固化环氧树脂体系研究[D].北京:北京化工大学,2008.

[6] White S R, Hahn H T. Process modeling of composite materials: residual stress development during cure. Part II. Experimental Validation7. Journal of Composite Materials, 1992, 26:2423-2453.

[7] Bogetti T A, Gillespie J W. Process-induced stress and deformation in thick-section thermoset composite laminates. Journal of Composite Materials, 1992, 26(5):626-660.

[8] Yoon K J, Kim J S. Effect of thermal deformation and chemical shrinkage on the process induced distortion of carbon/epoxy curved laminates. Journal of Composite Materials, 2001, 35(3):253-263.

[9] 胡照会,王荣国,赫晓东,等.复合材料层板固化全过程残余应变/应力的数值模拟.航空材料学报,2008,28(2):55-59.

[10] Prasatya P, McKenna G B, Simon S L. A viscoelastic model for predicting isotropic residual stresses in thermosetting materials: effects of processing parameters. Journal of Composite Materials, 2001, 35(10):826-848.

[11] 郭兆璞,陈浩然,段滋华.复合材料层合板粘弹性固化残余应力分析.计算力学学报,1996(4):401-407.

[12] 郭兆璞,陈浩然.复合材料层合板在加工固化后期降温速率对残余热应力.计算力学学报,1995(4):387-393.

[13] Kim Y K, White S R. Stress relaxation behavior of 3501-6 epoxy resin during cure. Polymer Engineering & Science, 1996, 36(23):2852-2862.

[14] Bapanapalli S K, Smith L V. A linear finite element model to predict processing-induced distortion in FRP laminates. Composites Part A: Applied Science & Manufacturing, 2005, 36(12):1666-1674.

[15] 岳广全.整体化复合材料壁板结构固化变形模拟及控制方法研究[D].哈尔滨:哈尔滨工业大学,2010.

[16] 庞杰.复合材料结构固化变形分析及其控制[D].南京:南京航空航天大学,2010.

[17] Yi S, Hilton H H. Effects of thermo-mechanical properties of composites on viscosity, temperature and degree of cure in thick thermosetting composite laminates during curing process. Journal of Composite Materials, 1998, 32(7):600-622.

[18] 杨进军.纤维分布对复合材料固化变形的影响.纤维复合材料,2010,27(1):13-17.

(责编 春早)

表1 复合材料试件的变形量

结构形式	实际变形/mm	模拟变形量/mm	相对误差/%
L型筋条	10	8.4729	15.27
多筋壁板	5	5.4067	8.13