

大厚度复合材料层合板固化制度数值模拟

徐 鹏, 晏冬秀, 刘卫平, 孙 凯, 孔娇月, 董柳杉

(上海飞机制造有限公司航空制造技术研究所, 上海 200070)

[摘要] 采用数值模拟方法研究了 X850 预浸料层合板的固化过程, 通过对比两种不同固化制度下大厚度复合材料的固化放热过程, 以及料层中心的最大温度值, 对升温过程的影响进行了分析, 最后与试验数据进行了对比验证。结果表明: 升温速率过快导致料层中心区域温度过高, 对零件质量产生不利的影 响, 可以通过适当减缓升温进行很好的缓解。同时, 模拟结果与试验结果吻合良好, 说明建立的模型符合 X850 预浸料的固化过程模拟要求, 能够对固化过程和温度历程进行定量化的预测。

关键词: 数值模拟; X850 预浸料; 层合板; 大厚度复合材料; 固化放热过程

Numerical Simulation Study of the Curing Process of Large Thickness Composites Laminate

XU Peng, YAN Dongxiu, LIU Weiping, SUN Kai, KONG Jiaoyue, DONG Liushan

(Institute of Aeronautical Manufacturing Technology, Shanghai Aircraft Manufacturing Corporation Ltd.,
Shanghai 200070, China)

[ABSTRACT] Numerical simulation method was employed to study the curing process of large thickness laminate with the resin of X850 toughened epoxy. Two different curing cycles was studied to analysis the heat release and the highest temperature in the center when curing. At last, experimental data was used to estimate the accuracy of the theoretical model. The result shows that overshoot of temperature occurs in the middle layer because of rapid heating, which will impact the quality of products, and this unfavorable influence can be eliminated by low heating rate. Meanwhile, the experimental data was used to estimate the simulation model. For the simulation result fits the experiment date very well that the model in this study can be considered suitable for the prediction of the curing process and the temperature history of X850 resin system composites.

Keywords: Numerical simulation; X850 toughened epoxy; Laminate; Large thickness composites; Curing cycle temperature history

DOI: 10.16080/j.issn1671-833x.2017.1/2.099

复合材料具有密度小、比强度高、比模量高、耐腐蚀性好等优点, 被广泛应用于航空航天领域。热压罐法是制备高性能航空复合材料的主要方法, 由于热压罐尺寸大, 当零件厚度较大时, 存在温度控制延时的问题。在升温过程中, 零件内部由于固化反应放出的热量, 存在温度过冲的风险。一旦温度超过允许范围, 材料的性能将会受到影响, 甚至可能导致零件报废。为了保证复合材料零件的性能, 降低废品率, 对材料固化过程进行研究十分必要^[1-2]。

目前的预浸料种类繁多, 新的树脂体系也不断涌现, 采用传统的试错法周期长、成本高, 而且复合材料零件结构多样, 一旦设计更改, 又要进行大量试验, 严重影响了研究和生产进度^[3-4]。数值模拟方法作为一种零成本的试验方法, 是一种良好的辅助制造手段。该方法仅

需少量辅助试验, 就能够对产品制造的整个过程进行分析和预测, 提供工艺优化方案。本文采用自催化模型对 X850 预浸料的固化过程进行数值模拟, 分析固化制度对大厚度复合材料层板温度分布的影响规律^[5-7]。

1 数学模型

树脂基复合材料的固化是一个温度 - 固化强耦合的过程^[8], 此过程伴随着热量的传递, 如图 1 所示。加热过程中, 热空气流经辅料和工装表面, 将热量传递给辅料和工装, 再通过热传导的方式传递给预浸料层, 随着温度的变化, 料层中发生固化反应并放出热量, 热量再以热传导的方式传递给辅料和工装^[9-10]。降温过程中, 空气温度低于辅料和工装, 通过对流带走热量。整个工艺周期中, 空气温度的变化遵循预设的固化制度。

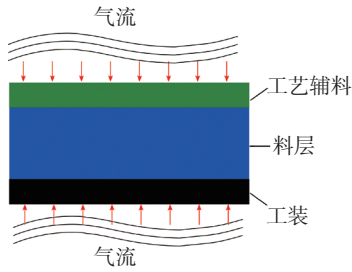


图1 复合材料固化过程中的能量传递

Fig.1 Energy transformation in curing process of composite

整个固化过程遵循能量守恒定律,其中温度的控制方程为:

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = k_x \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + k_y \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + k_z \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \dot{q} \quad (1)$$

式中: ρ 为材料的密度, C_p 为材料的体积比热容, T 为温度, t 为时间, k_x 、 k_y 、 k_z 分别表示材料在 3 个主方向上的热传导系数, \dot{q} 为内热源热流量,对于树脂基复合材料来说为单位时间内树脂固化所产生的热量,与固化速率相关,其定义为:

$$\dot{q} = \rho(1 - V_f)H_R \frac{d\alpha}{dt} \quad (2)$$

式中: V_f 为纤维体积含量, H_R 为单位质量树脂固化总反应放热, α 为树脂的固化度。

通过研究发现自催化模型得到的结果与试验结果相吻合,因此本文采用了自催化模型对固化过程中的固化度进行表征,为:

$$Y = k(1 - X)^m X^n \quad (3)$$

式中, Y 挖隔离带的化度随时间变化率, k 为系数, X 为固化度。

将试验结果拟合式(4)所示的反应动力学模型数学表达式为:

$$\frac{d\alpha}{dt} = 67198.43e^{-\frac{67342.89}{RT}} \alpha^{0.2857}(1 - \alpha)^{1.2373} \quad (4)$$

2 边界条件

研究中采用的预浸料为 X850 增韧树脂基复合材料,尺寸为 600mm × 550mm × 32mm (包含净边区域),共 160 层,铺层顺序为准各项铺层 [0° / 45° / 90° / -45°]₁₂₀,选择两种不同的固化制度进行对比研究,如图 2 所示。

设定材料、空气及工装的初始温度值为 30℃,其中第一种固化制度为 X850 体系预浸料标准的固化制度,采用 3℃ / min 的升温速率直接升至固化温度 180℃,保温 2h 后,以 -3℃ / min 的速率进行降温;第二种固化制度对升温过程进行了调整优化,采用 3℃ / min 的升温速

率升至 120℃,随后采用 0.5℃ 的升温速率升至 150℃,再以 3℃ / min 升至固化温度 180℃,保温 2h 后以 -3℃ / min 降温。本研究主要针对这两种固化制度,研究这两种升温过程对零件中心最大温度的影响。

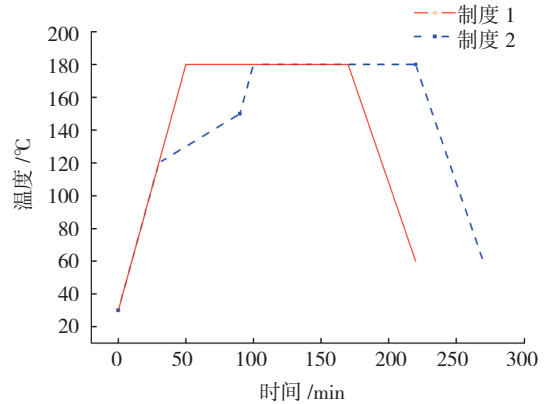


图2 对比研究的两种固化制度

Fig.2 Curing cycles used in comparing study

3 模拟结果及分析

3.1 固化制度对比

通过模拟得到层压板在固化制度 1 下不同时刻的温度分布云图如图 3 (a)~(c) 所示,时间点分别为 26min、56min 和 180min 时。从图 2 中可以看出,26min 为升温阶段,56min 为刚进入保温阶段,180min 为降温阶段。温度云图的显示中,蓝色为低温,红色为高温。由于零件内部的温差不大,所以图 3 (a)~(c) 3 张云图中温度标尺的上下线不同。其中图 3 (a) 中温度区间为 92~108℃,图 3 (b) 中温度区间为 180~195℃,图 3 (c) 为 148~160℃。从温度分布云图中可以看出,在升温阶段零件表层温度明显高于内层,并且由于零件厚度较大,表面和中心温差达 16℃;温度升至 180℃ 后,零件内部固化反应非常剧烈,到 56min 时,零件内部由

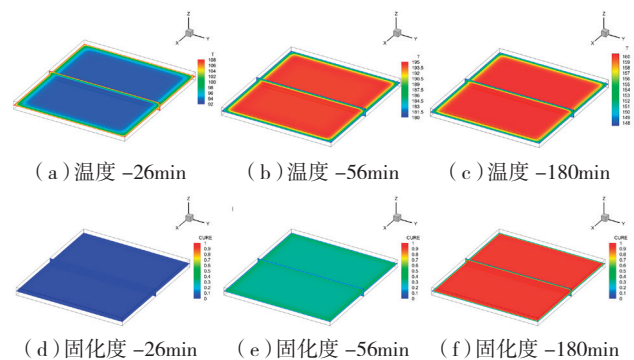


图3 固化制度1下不同时刻零件内部的温度和固化度分布云图

Fig.3 Temperature cure degree distributions inside the component in different time under curing cycle 1

于固化反应放热,最高温度接近 195℃;在降温阶段,零件内部温度高于表面。

图 3 (d)~(f)为 3 个时刻对应的固化度分布云图,3 张云图采用相同的固化度标尺,为 0~1.0。从图中可以看出,在升温阶段,由于零件温度较低,固化反应不强烈,所以固化度值很低,并且整体分布均匀。在 56min 时,达到固化温度,零件内部固化度明显增加。但是由于时间较短,所以固化度整体保证在 0.4 左右。到了 180min 时,零件内部已经基本固化完全,整体固化度都接近 1.0,说明零件已经基本固化完全。从固化度分布云图中还可以看出,整个厚板的固化分布比较均匀,未出现明显的固化梯度。

提取两种条件下层板中心区域不同时刻的固化度值,绘成如图 4 所示的曲线。图 4 中,红色曲线为制度 1 条件下的结果,蓝色曲线为制度 2 条件下的结果。

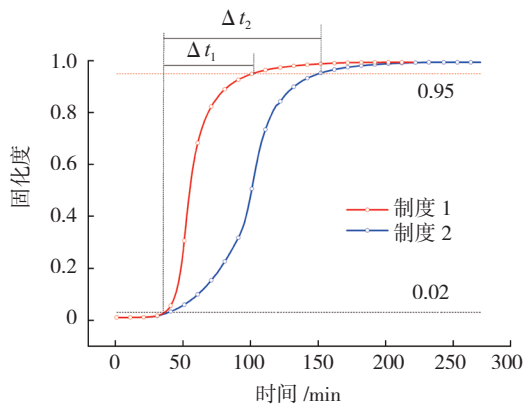


图4 两种固化制度下层板中心的固化度随时间变化曲线
Fig.4 Degree of cure in the center of two components under 2 different curing cycles

对比两条曲线可以看出,在初始阶段,温度较低,固化度变化都不明显。当采用 3℃/min 速率直接升至 180℃时,层板中心位置固化度变化非常剧烈,从固化初始阶段(0.02)达到固化稳定状态(0.95)所用的时间 Δt_1 极短;而采用固化制度 2 条件下,固化速率明显降低, Δt_2 明显加长。

两种条件下层板中心的温度和热流率随时间变化曲线如所示图 5 示,其中粗实线为温度值,细的虚线为热流率值。对比二者的热流率可以发现,采用固化制度 1 时,热流率最大值非常高,但是时间很短,采用固化制度 2 时,热流率最大值比较小,但是持续放热时间很长。

这说明,采用固化制度 1 时,零件升温速率高,很快达到固化温度要求,树脂发生固化反应剧烈,放出大量热量。因为零件厚度较大,固化反应放出的热量来不及释放,所以层板中心区域的温度大幅升高,如图中红色曲线所示,最大温度值达到 194.8℃,远远高出温度控制

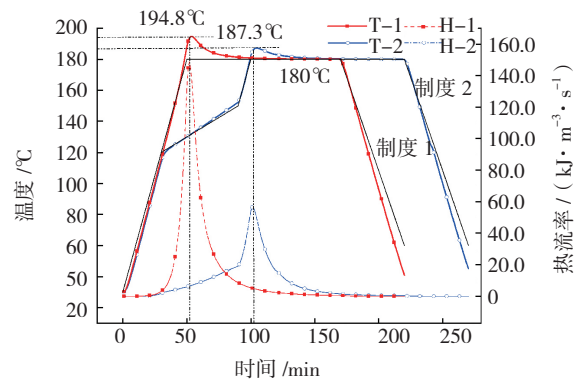


图5 两种固化制度下层板中心温度及热流率随时间变化曲线
Fig.5 Temperature and heat flow alternation in the center of two components under 2 different curing cycles

要求。

相比之下,采用固化制度 2,当升温至 180℃时,零件中心也出现放热峰值,但是热流率值较小,并且持续时间较长,热量能够及时释放,因为固化放热引起的温度增量也相对较小。零件中心最大温度值约为 187.3℃,基本满足温度控制要求。由此可见,在 X850 预浸料层板的固化过程中,如果升温过快,会引起料层中心位置超温,在其中适当降低升温速率,能够释放固化反应热,降低超温风险。

3.2 试验结果验证

从图 5 中两种固化制度条件下层板中心位置的温度历程模拟结果可以看出,采用固化制度 1,厚板中心会出现冲温现象,超过复材制造的要求,而固化制度 2 下零件中心最高温度可以满足制造要求。为了验证实际零件在固化制度 2 中最高温度是否超温,采用试验对这一结果进行验证。试验件的尺寸和模拟中的模型相同,为 600mm × 550mm × 32mm 的大厚度平板,采用固化制度 2 进行固化。同时,由于本研究关注的焦点是零件中心位置的最高温度,所以将零件贴袋面和工装面热电偶测得的温度数据作为模拟的热边界输入,从而得到零件中心位置的温度模拟结果。提取试验检测的中心点温度和模拟得到的中心点温度数据绘制如图 6 所示的曲线,其中黑色曲线为模拟结果,红色曲线为实测温度结果。

对比图 5 和图 6 可以看出,实际的固化周期时间大于理论的固化制度,这是热压罐的控温机制引起的,温度控制与检测之间存在一定的响应延时。在热压罐升温过程中,每一个升温阶段,控制器会监视每一根热电偶的温度值,都达到最低温度要求才会进入下一步骤。

从图 6 中可以看出,采用固化制度 2,零件中心的最大温度仅为 186.8℃,满足工艺要求。因此这一固化制

度适用于大厚度 X850 预浸料层压板的制造。同时,从图中也可以看出模拟结果与试验测得的数据吻合十分良好,升/降温过程基本重合。模拟得到的温度最大值为 184.2℃,与试验值间的误差仅为 1.39%。可见,本试验建立的模型在对 X850 预浸料层压板固化过程数值模拟的结果十分精确,能够实现对固化程度量化的预测,和对固化工艺参数优化。

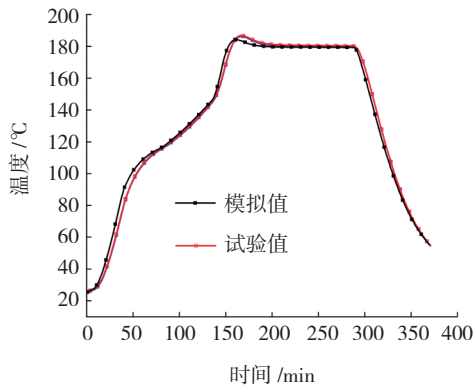


图6 固化制度2下零件中心位置模拟结果与实测值对比
Fig.6 The comparison of the experiment data and simulation result of the temperature in the center of component under curing cycle 2

4 结论

(1) 本文采用数值模拟方法对厚度达 32mm 厚板的固化过程进行了模拟,结果显示:采用 3℃/min 的升温速率直接升温至 180℃,会导致在进入保温阶段时,厚板内部由于固化反应放出大量热量,而且这些热量来不及释放导致厚板中心温度剧烈升高,最高达到 194.7℃,超出零件制造的要求,影响零件的质量。当把固化制度按照制度 2 进行调整后,由于放缓了零件的升温过程,延长了放热窗口,厚板零件的中心温度大幅降低,减小了质量风险。因此,对于厚度较大的复合材料,宜调整固化制度,减小升温速率,防止冲温。

(2) 为了验证厚板在固化制度 2 条件下的工艺适用性,对厚板中心的温度进行了测量试验,并且将料层贴袋面和工装面的温度作为热边界输入进行了模拟,考察零件中心的温度变化历程。通过对比可以看出,32mm 的厚板在固化制度 2 条件下最高温度满足工艺要求,并且采用这种方法的模拟结果与试验结果相差较小,能够用于对大厚度复合材料层压板的固化过程进行模拟。

参考文献

[1] LOOS AC, SPRINGER GS. Curing of epoxy matrix composites[J]. Journal of Composite Materials, 1983, 17(2): 135-169.
[2] GUTOWSKI TG, MORIGAKI T, CAI Z. The consolidation of laminate composites[J]. Journal of Composite Materials, 1987, 21(2): 172-

188.

[3] PILLAI VK, BERIS AN, DHURJATI PS. Intelligent curing of thick composites using a knowledge-based system[J]. Journal of Composite Materials, 1997, 31(1): 22-51.
[4] TAN Hua, YAN Shilin. Three-dimensional simulation of curing process for thermoset composites[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2004, 21(6): 167-172.
[5] PANTELELIS NG. Towards the dynamic optimisation for the cure control of thermoset-matrix composite materials[J]. Composites Science & Technology, 2005, 65(7-8): 1254-1263.
[6] RUSSELL J D, MADHUKAR M S, GENIDY M S, et al. A new method to reduce curing-induced stresses in thermoset polymer composites, part III: Correlating stress history to viscosity, degree of cure, and cure shrinkage[J]. Journal of Composite Materials, 2000, 34(22): 1926-1947.
[7] CHEUNG A, YU Y, POCHIRAJU K. Three-dimensional finite element simulation of curing of polymer composites[J]. Finite Elements in Analysis and Design, 2004, 40(8): 895-912.
[8] LI W, CHO Y, ACHENBACH J. Detection of thermal fatigue in composites by second harmonic Lamb waves[J]. Smart Materials and Structures, 2012, 21(8): 85-93.
[9] KARKANAS PI, Partridge IK, ATTWOOD D. Modelling the cure of a commercial epoxy resin for applications in resin transfer moulding[J]. Polymer International, 1996, 41(2): 183-191.
[10] MEGIATTO JD, SILVA CG, RAMIRES EC. Thermoset matrix reinforced with sisal fibers: effect of the cure cycle on the properties of the biobased composite[J]. Polymer Testing, 2009, 28(8): 793-800.

通讯作者: 徐鹏: 工学博士, 工程师。主要研究方向为复合材料工艺研究。E-mail: xphust@126.com

(责编 大漠)

(上接第 98 页)

LIU Ling. Development of spot facing machining automatic program system based on the VC++[J]. Machinery Design & Manufacture, 2010(9): 55-56.
[4] 邹礼萍. 基于 DAO 的动态数据库管理 [J]. 中国现代教育装备, 2010(3): 29-31.
ZOU Liping. DAO-based dynamic database management[J]. China Modern Educational Equipment, 2010(3): 29-31.
[5] 范冠雄. 基于 Visual C++ 的数据库访问技术比较研究 [J]. 计算机与数字工程, 2010(1): 64-66.
FAN Guanxiang. Visual C++ based database access technology comparison[J]. Computer & Digital Engineering, 2010(1): 64-66.
[6] 崔瑞男, 徐建军, 赵河明, 等. 参数化 CAD-CAPP 系统技术的研究应用 [J]. 工业控制计算机, 2011(11): 64-67.
CUI Ruinan, XU Jianjun, ZHAO Heming, et al. Research and application on parametric CAD-CAPP system technology[J]. Industrial Control Computer, 2011(11): 64-67.

通讯作者: 石鑫, 助理工艺工程师、助理软件工程师, 研究方向为零件工艺技术与典型 CAD/CAM 系统二次开发, E-mail: shixin4019@163.com.

(责编 大漠)