

树脂基复合材料固化过程中的温度和热应力场三维瞬态分析

陈淑仙^{1,2}, 田鹤¹, 秦文峰¹, 李梦¹, 杨文锋¹, 唐庆如¹

(1. 中国民航飞行学院航空工程学院 四川 广汉 618307; 2. 南京航空航天大学江苏省航空动力系统重点实验室 南京 210016)

【摘要】建立了热固性树脂基复合材料固化过程温度和热应力场分析的数学模型,采用有限元方法,进行了三维非稳态数值求解。通过与已有实验结果比较,验证了数学模型和计算方法的正确性。获得了3234/T300层合板固化过程中内部温度及热应力分布,分析了保温时间、升温速率、铺层设计等对温度、内部热应力的影响。数值计算结果表明:预固化时间越长,层合板内温度梯度越小,热应力峰值越低;升温速率越大,层合板内温度梯度越大,热应力峰值越大;采用对称铺层可降低层合板内部温度梯度和热应力。

关键词 固化; 有限元方法; 树脂基复合材料; 温度分布; 热应力

中图分类号 TB332

文献标志码 A

doi:10.3969/j.issn.1001-0548.2014.04.013

3D Unsteady Analysis of Temperature and Thermal Stress Fields of Resin Matrix Composite during Curing Process

CHEN Shu-xian^{1,2}, TIAN He¹, QIN Wen-feng¹, LI Meng¹, YANG Wen-feng¹, and TANG Qing-ru¹

(1. Aviation Engineering Institute, Civil Aviation Flight University of China Guanghan Sichuan 618307;

2. Jingsu Province Key Laboratory of Aerospace power System, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics Nanjing 210016)

Abstract A three-dimensional unsteady finite element analysis model is developed for the simulation of the temperature and thermal stress fields of the thermosetting resin matrix composite laminate during the curing process. The correctness of the numerical model and methodology is verified by comparing with the available experimental results. The distributions of temperature and thermal stress in 3234/T300 composite laminates during curing process are numerically predicted. The effects of the pre-curing time, heating rate and the stacking sequence on the temperature and thermal stress fields during curing process are analyzed. The numerical computation results indicate that the temperature gradient and thermal stress in the laminates decrease with the increasing pre-curing time and decreasing heating rate. Using symmetrical stacking sequence can also decrease the temperature gradient and thermal stress in composite laminates.

Key words curing; finite element method; resin matrix composite; temperature distribution; thermal stress

热固化成型是复合材料成型的主要方式之一。在树脂基复合材料层合板固化过程中,由于外部环境的变化和其自身固化反应产生的化学放热,使层合板内部产生复杂的温度分布和变化,这种复杂的温度场会影响到复合材料固化均匀性和材料内部的热应力,从而影响其固化质量。因此,研究层合板在固化过程中的温度、热应力分布及其变化,对改进固化工艺、提高固化质量具有重要意义^[1-4]。

采用实验方法研究固化过程可以直观地观察反应现象,测量固化温度等,但是实验操作周期长,

且影响实验结果的因素较多,难以保证可重复性。在该情况下,数值模拟便成为有力工具^[5-6]。对于复合材料层合板固化过程数值模拟研究,文献[7]首次采用模块化方法研究层合板固化过程,针对AS4/350126单向层合板建立了一维数学模型。文献[8]采用二维有限元方法数值模拟了任意截面形状和边界条件层合板的固化过程。随着复合材料整体成型和共固化技术的发展,采用三维有限元方法模拟复杂形状结构和边界条件的固化过程成为该领域的发展方向之一^[9-12],并取得了一定进展。比如分析夹杂气

收稿日期: 2013-06-12; 修回日期: 2014-07-04

基金项目: 国家自然科学基金民航联合基金重点项目(U1233202); 国家自然科学基金(51306201); 江苏省航空动力系统重点实验室开放课题资助项目(APS-2013-04)

作者简介: 陈淑仙(1975-),女,博士,副教授,主要从事复合材料固化过程研究。~~第二作者罗衡峰(1978-),男,硕士,高级工程师,主要从事信息安全方面研究。第三作者王佳昊(1978-),男,博士,副教授,主要从事网络安全,无线传感器网络方面的研究。第四作者秦志光(1956-),男,博士,教授(博导),主要从事信息安全方面的研究。~~

泡^[13]、树脂物性参数^[14-15]、固化模具^[16]对固化过程温度和固化度的影响；分析固化后期降温过程材料中的应力和变形^[17-19]。但对于树脂基复合材料固化过程中的热应力三维非稳态研究还少见报道。本文采用三维非稳态有限元分析方法，数值模拟树脂基复合材料固化过程中的温度和热应力场，分析预固化时间、升温速率以及层合板铺层顺序等对复合材料固化过程中温度场及热应力的影响，提出了优化复合材料固化工艺以及结构设计方案。

1 数学模型

1.1 热传导方程

复合材料固化过程中温度场分布本质上是一个具有非线性内热源的热传导问题，其中的内热源来自基体树脂的放热化学反应。用Fourier热传导定律和能量平衡关系建立该问题的数学模型。3234/T300是综合性能优良的碳纤维增强中温固化环氧复合材料体系，已在航空航天、电子、船舶等领域得到了越来越广泛的应用^[14]，因此以3234/T300层合板固化过程为研究对象，以层合板底部中心为坐标原点。三维、内热源、各向异性材料的瞬态热传导控制方程为：

$$k_{xx} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + k_{yy} \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + k_{zz} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \dot{q} = \rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} \quad (1)$$

式中， ρ 、 c_p 、 T 和 t 分别为密度、比热、温度和时间； k_{xx} 、 k_{yy} 、 k_{zz} 为材料在 x 、 y 、 z 主轴方向上的导热系数； \dot{q} 为固化反应放热速率，即单位时间内单位体积由于固化反应所生成的热量，可以根据材料的固化动力学方程求得^[12]：

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

$$\frac{d\alpha}{dt} = A \exp\left(\frac{-\Delta E}{RT}\right) \alpha^m (1 - \alpha)^n \quad (3)$$

式中， α 为固化度， $\alpha = H(t)/H_R$ ， $H(t)$ 、 H_R 分别为固化反应进行到 t 时刻和反应结束时总的反应放热量； V_f 为纤维体积含量； ΔE 为材料的活化能； A 为频率因子； m 和 n 为反应级数。3234/T300环氧体系物性参数及固化动力学方程参数取值见文献^[14]。

1.2 热应力方程

令弹性体内各点温度变化量为 ΔT ，若不受约束，则将产生主正应变 $\beta_T \Delta T$ (β_T 为材料的热膨胀系数)。将温度变化引起的应变作为初应变，并以 ε^0 表示，则有：

$$\varepsilon^0 = \beta_T \Delta T [1 \ 1 \ 1 \ 0 \ 0 \ 0]^T \quad (4)$$

由于物体具有弹性，又将引起附加应变 ε ，故总应变为：

$$\begin{cases} \varepsilon_x - \varepsilon_x^0 = \frac{1}{E} [\sigma_x - \mu(\sigma_y + \sigma_z)] \\ \varepsilon_y - \varepsilon_y^0 = \frac{1}{E} [\sigma_y - \mu(\sigma_x + \sigma_z)] \\ \varepsilon_z - \varepsilon_z^0 = \frac{1}{E} [\sigma_z - \mu(\sigma_x + \sigma_y)] \end{cases} \quad (5)$$

则应力为：

$$\sigma = D(\varepsilon - \varepsilon^0) = DBq^e - D\varepsilon^0 \quad (6)$$

式中， q^e 为节点位移向量，弹性系数矩阵 D 、几何矩阵 B 以及热膨胀系数 β_T 、弹性模量 E 等弹性力学性能参数的取值和计算可参考文献^[18]。

1.3 初始条件与边界条件

1) 初始条件

$$\begin{aligned} T(x, y, z, t) &= T_0 \\ \alpha|_{t=0} &= 0 \end{aligned} \quad (7)$$

在实际计算中取 $\alpha|_{t=0} = 10^{-4}$ 。

2) 边界条件

层合板上表面 T 和侧表面 S ：

$$T_1 = T_3 = T_H(t) \quad (8)$$

层合板的下表面 B ：

$$k_{zz} \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_B = 0 \quad (9)$$

式中， $T_H(t)$ 表示电热毯下表面的温度，由固化工艺温度曲线决定。

2 计算方法

基于有限元方法对控制方程进行离散，采用三维八节点实体单元，节点自由度为温度和固化度。为验证计算方法和模型的正确性，文献^[14]数值模拟实验中所采用的3234/T300B层合板(由于边界条件及层合板的对称性，以层合板的1/4为研究对象)在图1所示的热补仪固化工艺曲线下的固化过程，并将代表点温度随时间的变化曲线模拟值与实测值进行对比，两者基本吻合，证明了本计算模型和方法的正确性。

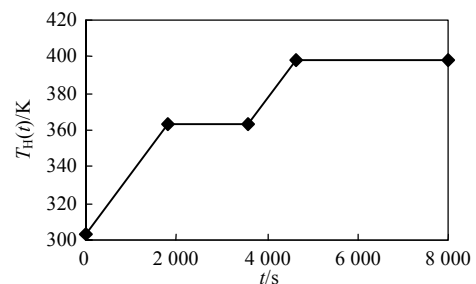


图1 3234/T300B复合材料固化操作温度历程

3 结果和讨论

3.1 层合板内部的温度和热应力分布

图2a和图2b分别为采用图1所示固化工艺(第一升温阶段0~180 0 s、预固化阶段180 0~360 0 s、第二升温阶段360 0 s~465 0 s和固化阶段465 0~800 0 s)曲线下240 0 s和400 0 s时刻层合板内部的温度(单位: K)分布(为了表示层合板内部的温度分布, 将层合板上下翻转)。2 400 s时, 层合板内部树脂尚未发生剧烈反应, 外表面的温度明显高于内部温度。然而随着内部的树脂固化反应释放热量, 内部温度迅速升高, 4 000 s时, 内部温度高于外部温度。从图中还可看出, 2 400 s时刻的内部反应生成热较小, 层板内温度梯度较小; 4 000 s时刻的大量内部反应热生成, 温度梯度较大。

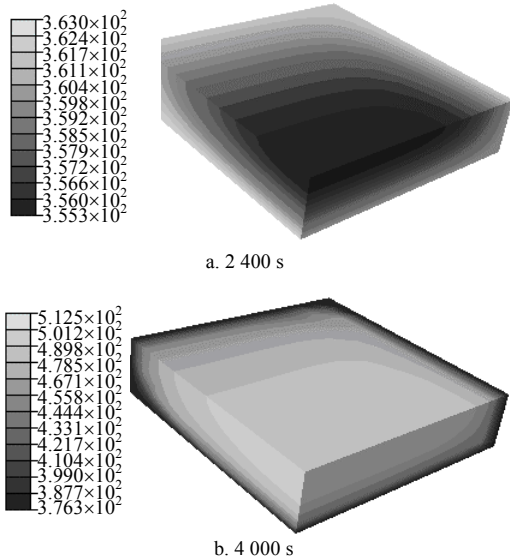


图2 层合板内部温度分布

图3为400 0 s时刻, $x=0$ 剖面等效热应力云图, 从图中可看出, 发生剧烈固化反应时, 由于层板内温度梯度较大, 内部热应力与周围区域相比较较大。

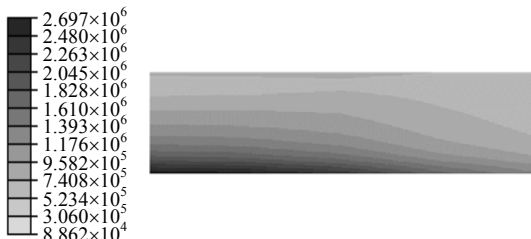


图3 4 000 s时刻, $x=0$ 的剖面等效热应力云图

3.2 预固化时间对层合板内温度和热应力峰值的影响

预固化时间为1 200, 1 800, 2 400 s对应的固化

过程中, 层合板中心点温度随时间的变化曲线如图4所示。随着热补仪设置温度的上升, 中心点温度缓慢增长, 达到固化温度后固化开始, 内部放出固化热, 温度急剧上升, 出现了一个明显的波峰。3种固化工艺下, 中心点温度的峰值分别为522.2, 512.6, 497.3 K。说明通过延长预固化时间可以降低层合板中心点的温度峰值, 减小层合板内温度梯度。这是因为固化工艺的预固化时间越长, 层合板内热传递就越充分, 中心点的温度峰值就越小。

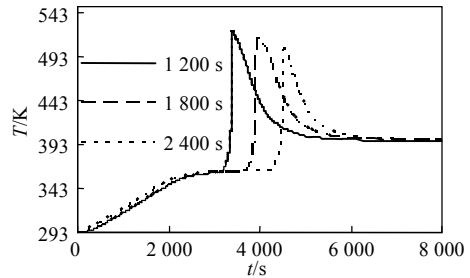


图4 预固化时间对中心点温度影响

将温度场作为载荷, 计算上述3种固化工艺条件下, 层合板内部单个节点等效热应力峰值。表1给出了不同预固化时间对应的A(0.05,0.05,0.0114)、B(0,0,0.0014)、C(0,0,0)、D(0.05,0.05,0)4个点等效热应力峰值的大小。从表中可看出, 随着预固化时间的增长, 各点应力峰值降低。

表1 不同预固化时间下A、B、C、D点等效热应力的峰值 σ_{max}

预固化时间/s	MPa			
	A	B	C	D
120 0	8.30	5.83	3.88	3.85
180 0	6.22	4.24	2.53	3.55
240 0	5.58	3.38	2.18	3.31

3.3 升温速率对层合板内温度和热应力峰值的影响

图5为1.5, 2, 2.5K/min共3种不同的升温速率所对应的固化工艺下中心点温度随时间的变化曲线。从图中可看出, 升温速率越大, 中心点的温度峰值越大, 层合板内温度梯度越大。这是因为升温越快, 单位时间内释放的固化反应热量越多, 且远大于中心向外的传热量, 使其温度峰值增加。

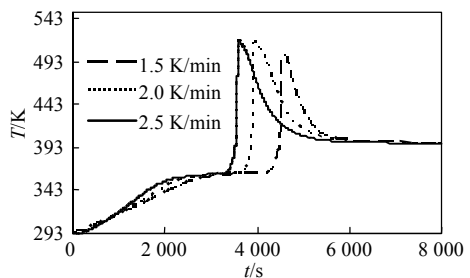


图5 升温速率对中心点温度影响

表2给出了不同升温速率下A、B、C、D点等效

热应力峰值 σ_{\max} 。从表中可看出,升温速率增大,层合板内部节点的应力峰值也会随之增大,这与图5中升温速率越大,中心点的温度峰值越大,层合板内温度梯度越大一致。

表2 不同升温速率下A、B、C、D点等效热应力峰值 σ_{\max}
MPa

升温速率/ $K \cdot \min^{-1}$	A	B	C	D
1.5	4.58	2.92	2.01	1.93
2.0	6.22	4.24	2.53	3.55
2.5	6.37	5.17	2.76	3.84

3.4 铺层设计对层合板温度场和热应力的影响

将复合材料分成4层,通过给这4层指派不同的坐标系,实现不同的铺层顺序。表3为 $[0]_4$ 、 $[0_3/90]$ 、 $[0_2/90/0]$ 、 $[0/90_2/0]$ 、 $[0_2/90_2]$ 共5种不同的铺层方案下A、B、C、D点温度峰值。从表中可以看出, $[0]_4$ 、 $[0_2/90/0]$ 、 $[0/90_2/0]$ 这三种铺层中,同一点的温度峰值 T_{\max} 相近,且小于 $[0_3/90]$ 、 $[0_2/90_2]$ 两种铺层中对应点的温度峰值。因此采用对称铺层可降低层合板内部温度峰值和温度梯度。

表3 不同铺层方案中A、B、C、D点温度峰值 T_{\max}
K

铺层方案	A	B	C	D
$[0]_4$	462.4	505.3	515.2	468.2
$[0_3/90]$	487.8	513.5	521.1	495.2
$[0_2/90/0]$	464.0	507.0	516.2	469.7
$[0/90_2/0]$	464.1	507.0	514.6	470.2
$[0_2/90_2]$	487.9	513.3	527.7	495.6

图6为 $[0_3/90]$ 、 $[0_2/90/0]$ 两种铺层方案中, $x=0$ 平面的500 0 s时刻的等效热应力云图,从图中可看出, 0° 铺层和 90° 铺层的接触面上的热应力相对于其他位置较大。这是由于3234/T300B材料在 x 和 y 方向的热导率相差较大,导致热应力集中。

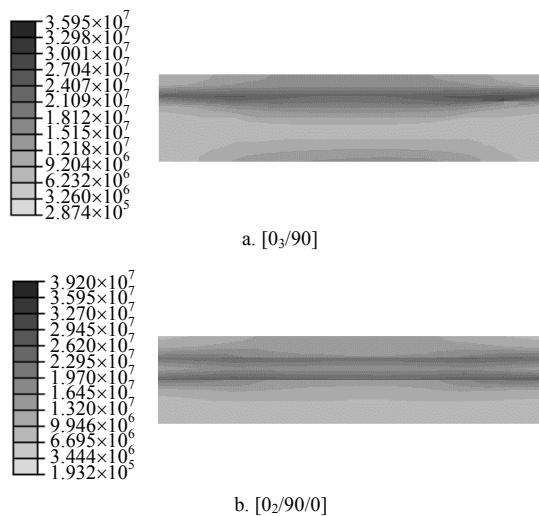


图6 $x=0$ 平面的500 0 s时刻的等效热应力云图
表4给出了不同铺层方案中A、B、C、D点等效

热应力峰值。从表中可以看出, $[0]_4$ 铺层中A、B、C、D点的应力水平相对于其他铺层方案要小很多。在 $[0/90_2/0]$ 、 $[0_2/90_2]$ 两种 90° 铺层比例均为50%方案中,对称铺层 $[0/90_2/0]$ 各节点的应力峰值相对较小。

表4 不同铺层方案中A、B、C、D点等效热应力峰值 σ_{\max}
MPa

铺层方案	A	B	C	D
$[0]_4$	5.93	8.18	2.73	4.91
$[0_3/90]$	17.23	20.02	8.30	10.79
$[0_2/90/0]$	33.39	40.19	12.36	19.94
$[0/90_2/0]$	17.92	18.70	5.58	6.18
$[0_2/90_2]$	45.49	65.71	7.32	29.31

4 结 论

采用三维非稳态有限元分析方法,数值模拟了树脂基复合材料固化过程中的温度和热应力场,通过与已有实验结果比较,验证了数学模型和计算方法的正确性。数值模拟结果表明:采用延长预固化时间、降低升温速率、采用对称铺层等方案可降低层合板中心点的温度峰值,减小层合板内温度梯度和热应力。

本文的研究工作得到了中国民航飞行学院科学研究基金项目(J2007-24)和中国民航飞行学院青年科学基金项目(Q2008-13)的支助,在此表示感谢!

参 考 文 献

- [1] WALCZYK D, KUPPERS J. Thermal press curing of advanced thermoset composite laminate parts[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2012, 43(4): 635-646.
- [2] TOUDESHPY H H, SADIGHI M, VOJDANI A. Effects of curing thermal residual stresses on fatigue crack propagation of aluminum plates repaired by FML patches[J]. Composite Structures, 2013, 100(6): 154-162.
- [3] KIM S S, MURAYAMA H, KAGEYAMA K, et al. Study on the curing process for carbon/epoxy composites to reduce thermal residual stress[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2012, 43(8): 1197-1202.
- [4] VAUTARD F, OZCAN S, POLAND L, et al. Influence of thermal history on the mechanical properties of carbon fiber-acrylate composites cured by electron beam and thermal processes[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2013, 45(2): 162-172.
- [5] YANG Q, LI X D, SHI L, et al. The thermal characteristics of epoxy resin: Design and predict by using molecular simulation method[J]. Polymer, 2013, 54(23): 6447-6454.
- [6] ROUISSON D, SAIN M, COUTURIER M. Resin transfer molding of natural fiber reinforced composites: cure simulation[J]. Composites Science and Technology, 2004, 64(5): 629-644.
- [7] LOOS A C, SPRINGER G S. Curing of epoxy matrix composites[J]. Journal of Composite Materials, 1983, 17(2): 135-169.

- [8] BOGETTI T A, GILLESPIE. Two-dimensional cure simulation of thick thermosetting composites[J]. *Journal of Composite Materials*, 1991, 25(3): 239-273.
- [9] 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.
- [10] WANG X F, LOU D Y S, ZHANG N L. A helical tow model and numerical simulation of on-line thermal curing of thermoset composites in filament winding[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2004, 47(22): 4807-4820.
- [11] JOSHI S C, LAM Y C. Integrated approach for modelling cure and crystallization kinetics of different polymers in 3D pultrusion simulation[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2006, 174(1-3): 178-182.
- [12] 张纪奎, 关志东, 郦正能. 热固性复合材料固化过程中温度场的三维有限元分析[J]. *复合材料学报*, 2006, 23(2): 175-179.
ZHANG Ji-kui, GUAN Zhi-dong, LI Zheng-neng. Three-dimensional finite element analysis for the temperature field of thermoset composites during curing process[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2006, 23(2): 175-179.
- [13] 王荣国, 田秋, 马文有, 等. 数值计算模拟复合材料固化中夹杂气泡的影响和残余应力的变化[J]. *复合材料学报*, 2002, 19(5): 95-101.
WANG Rong-guo, TIAN Qiu, MA Wen-you, et al. Modulating void action and residual stress variation of composite materials during curing process[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2002, 19(5): 95-101.
- [14] 闫勇, 庄茁, 周正刚, 等. 树脂比热容对复合材料固化过程数值模拟的影响[J]. *航空材料学报*, 2006, 26(2): 37-40.
YAN Yong, ZHUANG Zhuo, ZHOU Zheng-gang, et al. Effect of specific heat of thermal resin on simulation of composite curing process[J]. *Journal of Aeronautical Materials*, 2006, 26(2): 37-40.
- [15] 杨自春. 复合材料层合结构的非线性传热分析[J]. *海军工程大学学报*, 2000(5): 9-13.
YANG Zi-chun. Nonlinear heat transfer of composite material laminated structure[J]. *Journal of Naval University of Engineering*, 2000(5): 9-13.
- [16] YUE G Q, ZHANG B M, DAI F H, et al. Three-dimensional cure simulation of stiffened thermosetting composite panels[J]. *Journal of Materials Science and Technology*, 2010, 26(5): 467-471.
- [17] WHITE S R, HAHN H T. Cure cycle optimization for the reduction of processing-induced residual stresses in composite materials[J]. *Journal of Composite Materials*, 1993, 27(14): 1352-1378.
- [18] WHITE S R, HAHN H T. Process modeling of composite materials: Residual stress development during cure, part I. model formulation[J]. *Journal of Composite Materials*, 1992, 26(16): 175-182.
- [19] MSALLEM Y A, JACQUEMIN F, BOYARD N, et al. Material characterization and residual stresses simulation during the manufacturing process of epoxy matrix composites[J]. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2010, 41(1): 108-115.

编辑 张俊