模具表面状态对复合材料构件固化变形的影响

刘德博[1]　湛利华[2,3,4]　丁星星[4]　蒋成标[4]

（1　北京宇航系统工程研究所，北京　100076）

（2　中南大学高性能复杂制造国家重点实验室，长沙　410083）

（3　中南大学机电工程学院，长沙　410083）

（4　中南大学轻合金研究院，长沙　410083）

文　摘　为查明不同模具表面状态下的复合材料构件应变演变规律及其对固化变形的影响，采用热电偶和光纤光栅传感器对不同模具表面状态下的复合材料构件在热压罐成型工艺过程中的温度和应变进行在线监测，获得不同模具表面状态下构件应变的变化规律。结果表明：升温阶段脱模布的使用能够有效屏蔽模具-构件界面相互作用，使构件在升温阶段的应变很小。三层脱模剂模具表面条件下构件中的应变明显小于一层脱模剂；降温阶段三种实验条件下在构件中都出现了较大的压应变，其中一层脱模剂模具表面状态下模具-构件相互作用力最大，在固化工艺完成后构件发生翘曲变形，且翘曲变形以沿纤维方向为主。

关键词　复合材料，固化应变，模具，表面状态，残余应变

中图分类号：TB332　　DOI：10. 12044/j. issn. 1007-2330. 2019. 01. 012

Influence of Tool Surface Condition on Cure-Induced Deformation of Composite Structure

LIU Debo[1]　ZHAN Lihua[2,3,4]　DING Xingxing[4]　JIANG Chengbiao[4]

（1　Beijing Institute of Astronautical Systems Engineering，Beijing　100076）

（2　State Key Lab of High Performance Complex Manufacturing，Central South University，Changsha　410083）

（3　School of Mechanical and Electrical Engineering，Central South University，Changsha　410083）

（4　Institute of Light Alloy，Central South University，Changsha　410083）

Abstract　In order to find out the strain change law of the composite component under different surface conditions of the tools and their influence on the curing deformation，thermocouple and FBG sensors were used to monitor the temperature and strain of composite components，and the change law of component strain under different tool surface conditions could be obtained.The results show that the use of demoulding cloth can effectively weaken the interface interaction between tool and component，so that the strain of component is very small in the heating stage. And the strain of component with the tool surface condition of three-layer demoulding agent is obviously less than that of one-layer demoulding agent. In the cooling stage，large compressive strain of composites is detected in all three surface conditions. The tool-part interaction force is the largest when there is one layer of releases agent，and the main warping deformation are along the fiber direction after the curing process.

Key words　Composite，Cure-induced strain，Tool，Surface condition，Residual stress

0　引言

先进树脂基复合材料因其高强度、耐腐蚀和抗疲劳等特点在航空航天领域广泛应用[1-3]。在热固性树脂基复合材料热压罐成型过程中，罐内压力会使构件紧贴在模具上，当温度变化时，模具与构件的自由热膨胀或收缩会受到抑制，使得两者之间产生相互作用[4]。复合材料构件固化过程中产生的内应力在脱模释放后引起构件的回弹或翘曲，影响装配甚至直接报废。而在热压罐工艺中，金属模具与复合材料构件之间热胀系数不匹配是引起构件固化残

收稿日期：2018-02-15

基金项目：国家重点基础研究计划（973计划）项目（2014CB046502）

第一作者简介：刘德博，1984年出生，博士，主要从事碳纤维复合材料方面的研究工作。E-mail：13581984096@163.com

通信作者：湛利华，1976年出生，博士，教授，主要从事先进材料制备技术与装备方面的研究工作。E-mail：yjs-cast@csu. edu. cn

余应力及变形的主要因素[5-7]。为了减小复合材料构件的固化变形，需要对复合材料构件在热压罐固化过程中产生残余应力的机制有更进一步的研究。

KAUSHIK利用自制的实验装置模拟热压罐工艺环境，通过测量固化过程中模具与构件之间的动态和静态摩擦因数来研究模具-构件相互作用，发现树脂固化度和升温速率影响模具-构件相互作用、树脂固化收缩、复合材料性能、残余应力和界面失效模式从而与界面摩擦因数形成一定的函数关系[8]。FERNLUND通过实验研究发现如果构件沿着曲率方向上的铺层数量占大多数，改变另外的铺层方式不会对回弹程度产生大的影响，此外固化周期、模具表面、预浸料种类和构件铺层都会显著影响C型件的回弹，并且L型件由模具与构件热胀系数不匹配引起的回弹远大于C型件[9]。TWIGG研究了固化工艺条件和平板件长宽比对模具-构件相互作用引起的翘曲，发现相较于固化压力，构件的长宽比对翘曲的影响更大，而在不同模具表面状态下成型后的构件翘曲并无显著区别，并且还给出了平板最大翘曲的计算公式[10]。岳广全采用光纤光栅监测了复合材料单向板固化过程中沿构件厚度方向和面内的应变，发现构件与模具热膨胀系数不同引起的固化残余应变沿构件厚度方向呈梯度分布，靠近模具端最大[11]。模具表面状态对复合材料固化成型精度具有十分重要的意义，但是关于固化过程中不同模具表面状态对复合材料固化过程中应变影响的研究鲜有报道。

本文对复合材料单向层合板在热压罐固化工艺中的温度和应变进行实时监测，利用光纤光栅应变传感器直接获得不同模具表面情况下复合材料构件内部的应变变化，并以此研究固化过程中不同模具表面状态对模具-构件相互作用的影响。

1 实验

1.1 材料及设备

以T700/环氧树脂预浸料作为原材料，将每层预浸料裁剪为200 mm×200 mm，整个构件使用10层预浸料单向铺贴而成，成型模具为铝制平板。热压罐最高使用温度为250 ℃，最大工作压力为2 MPa，最大升温速率5 ℃/min，可用最大试件尺寸435 mm×350 mm×600 mm，由大连樱田机械制造有限公司生产。光纤光栅解调仪型号为Zen Optics 960，适用波长范围：1 525 ~1 565 nm，由上海真光信息科技有限公司生产。光纤光栅传感器作为应变传感器，温度灵敏系数为0.0095 nm/℃，应变灵敏系数为0.0012 nm/με。

1.2 实验原理[12-17]

光纤光栅传感器的纤芯折射率在轴向发生周期性调制，根据模耦合理论，中心反射波长的特征方程为：

$$\lambda_B = 2n_{eff}\Lambda \tag{1}$$

由于光纤光栅对温度和应变均敏感，对单独一个光纤光栅传感器的温度与应变共同造成的波长漂移无法区分，为了解决光纤光栅温度和应变交叉敏感的问题，使用热电偶对光纤光栅传感器进行温度补偿。这两个传感器位置接近，可以认为处于相同的温度场中，即两者的温度历程相同，因此可通过公式(2)剔除波长变化中温度的影响，得到监测点处的应变：

$$\Delta\varepsilon = (\Delta\lambda - K_T\Delta T)/K_\varepsilon \tag{2}$$

式中，$\Delta\varepsilon$和ΔT分别是光栅应变变化量和温度变化量，$\Delta\lambda$为光栅的波长漂移量，K_ε和K_T分别为光栅的应变灵敏系数和温度灵敏系数。

1.3 实验方法

为了更好地监测不同模具表面状态对构件应变的影响，将光纤光栅应变传感器布置于第一层与第二层预浸料之间，其中第一层预浸料与模具接触，如图1所示，光纤与碳纤维平行。图2为热电偶和光纤光栅传感器在预浸料中的铺放位置示意图。

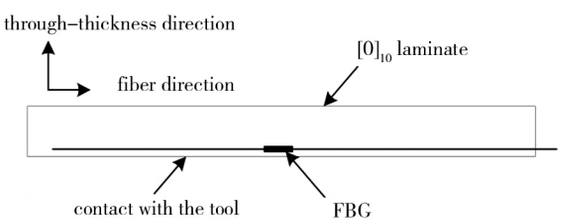


图1 复合材料构件中光纤光栅位置图

Fig. 1 Location of FBG in composite part

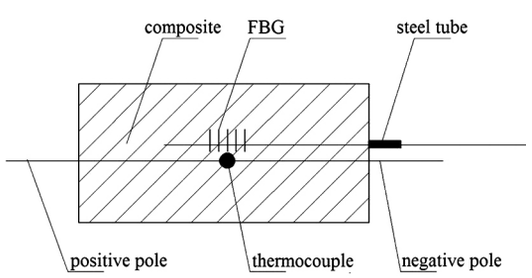


图2 传感器铺放位置图

Fig. 2 Locations of the sensors

由于热电偶直径很小，仅为0.3 mm，并且在同一平面内构件中的温度场基本上是均匀的，因此热电偶能获得应变监测点处的温度曲线，同时不会影响光纤光栅监测点附近的应变变化。

固化工艺如图3所示。设计了三种不同的模具表面状态，其中第一组和第二组实验中分别在模具表面涂覆一层和三层脱模剂，利用毛毡蘸取脱模剂，

并通过手工涂覆的方式来施加于模具表面，脱模剂涂覆方法为：从模具一边向另一边以方向不可逆方式涂覆，每层脱模剂涂覆次数为2，涂覆时力求脱模剂均匀。每层脱模剂的时间间隔为15 min[环境要求：温度(25±1)℃，湿度50%±10%]。利用椭偏仪对脱模剂厚度进行了测量。

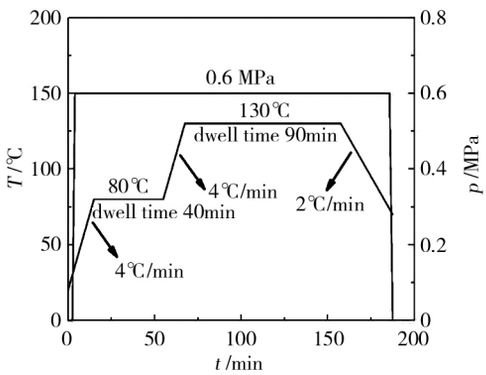


图3　热压罐工艺曲线

Fig. 3　Curves of temperature and pressure in autoclave

结果发现："一层"和"三层"脱模剂厚度分别为8.078 μm和27.579 μm。为便于叙述，后文用"一层"和"三层"来描述模具表面状态。第三组实验在模具表面覆盖一层脱模布，材质为氟乙烯丙烯共聚物(FEP)。

2　结果与讨论

图4为构件温度与热压罐罐内温度变化曲线，由于存在热交换过程，构件温度和罐内温度相比稍有滞后，整体上两条曲线保持相当的一致性。图5为三种模具表面状态下复合材料构件固化过程中温度变化曲线，由图5可知，三次试验中复合材料构件内部温度历程基本一致，由此可知：模具表面状态的改变对构件温度的变化影响很小。

图6为三种模具表面状态下复合材料单向板在沿纤维方向上的应变演变曲线。在第一个升温/保温阶段时树脂处于粘流态，模具以及其材料特性对制件固化应变的影响很小，而树脂流动是构件固化过程应变增大的主要因素，此时单向板沿纤维方向上主要为拉应变；第二个升温阶段时树脂处于橡胶态，树脂基体热膨胀导致拉应变增大；第二个保温阶段初期，剧烈的交联反应使树脂基体收缩，应变有所降低，随后保持稳定；降温阶段，随着温度的降低，树脂基体收缩，三种实验条件下的应变均随温度降低而减小，并转换为压应变。复合材料层合板应变主要是由树脂流动、固化收缩及模具-构件相互作用引起，并主要形成于固化过程降温阶段[18]。三种实验条件下的应变曲线差异说明改变模具表面状态会影响模具与构件之间的相互作用，从而使构件产生不同大小的固化变形。

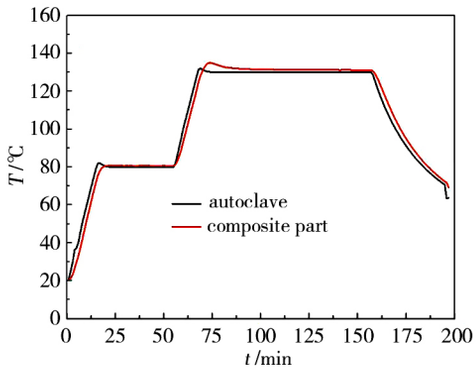


图4　构件温度与罐内温度变化

Fig. 4　Curves of temperature of autoclave and part

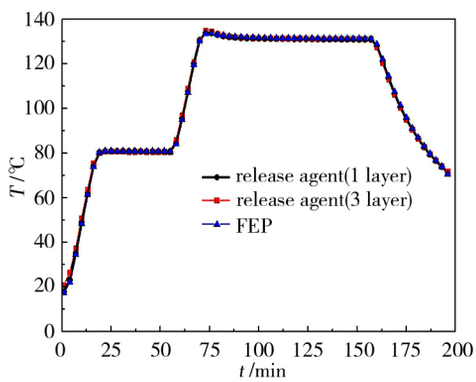


图5　不同模具表面条件下构件温度曲线

Fig. 5　Curves of temperature of part in different condition

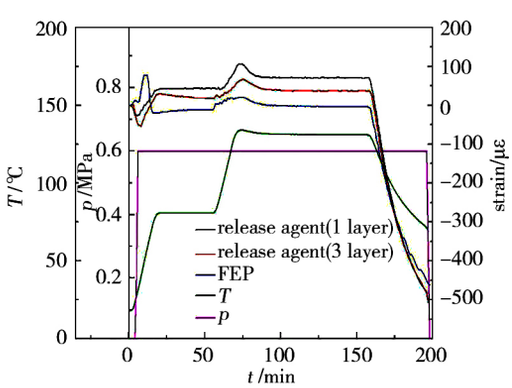


图6　三种模具表面状态下应变曲线

Fig. 6　Curves of strain in three kinds of tool surface condition

从图6可知，第一个升温阶段初期，在罐内压力和树脂流动双重作用下，制件中的应变产生了一个下凹的波谷，这主要是由于固化初期在罐内压力作用下，复合材料构件会被压实，并导致传感器受压，而后随着构件温度逐渐升高，树脂逐渐转变为粘流态，黏度逐渐降低、流动性增大，由于树脂流动和传力性能减弱，使得光纤光栅传感器逐渐由受压状态恢复正常，在监测结果上表现为压应变逐渐减小。当工艺温度达到80 ℃进入第一个保温阶段时，树脂已经过了凝胶点，具备了一定的应力传递能力[4]，在

模具与构件因热胀系数不匹配导致的相互作用影响下，接触模具的构件部分会出现拉应变，但模具表面状态为一层脱模剂的构件应变明显比三层脱模剂模具表面状态下的构件应变要大，形成这种差别主要是模具-构件相互作用是通过两者之间的剪切应力来实现的，而两者所能传递的剪切应力会受到模具表面粗糙度和模具与构件之间摩擦因数的影响[19]。相较于一层脱模剂，三层脱模剂能够形成更厚的界面，改善模具表面粗糙度，降低模具与构件之间的摩擦因数，减小两者之间的剪切应力，使得在升温过程中由模具与构件热膨胀不同引起的构件应变变化较小。而模具表面状态为脱模布时，构件中监测到的应变几乎为零，说明脱模布能够有效隔绝模具与构件之间的剪切作用，屏蔽模具-构件相互作用，因此当温度保持稳定后，这三种情况下构件应变大小存在明显梯度，并随着模具-构件相互作用的减弱而减小，如图7所示。

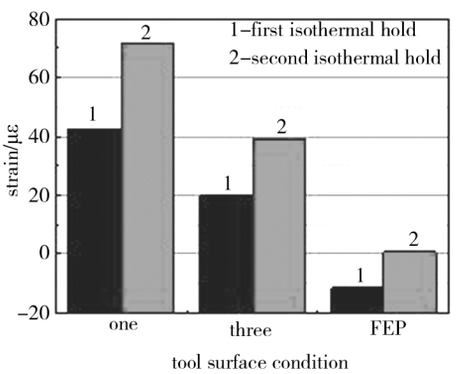
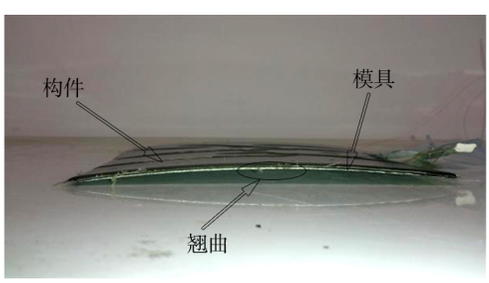


图7　两次保温阶段不同模具表面状态下的应变值

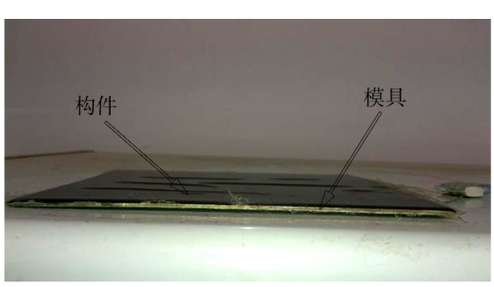
Fig. 7　Strain values in two isothermal hold stages under different tool surface conditions

在第二个升温阶段，对模具-构件相互作用减弱较小的一层脱模剂模具表面状态下的应变增幅最大，并且其增长速率也最大，而脱模布模具表面状态下的增幅最小。并且当温度上升到固化温度附近时，构件中产生剧烈的固化反应，树脂大量放热并且产生固化收缩[20]，从而在三个实验中应变曲线均产生了一个波峰。随着固化工艺进入第二个保温阶段，三种模具表面状态下构件应变出现了和第一次保温阶段相似的梯度。三组实验条件下的应变数值相较于第一个保温阶段均有一定的增大，其中一层脱模剂模具表面条件下的应变增幅最大，这也与前述的应变变化机制分析相同：一层脱模剂模具表面条件对模具与构件之间的相互作用减弱效果最小，从而其模具与构件剪切应力在三种模具表面条件中是最大的，因此构件中产生的应变也是最大的。

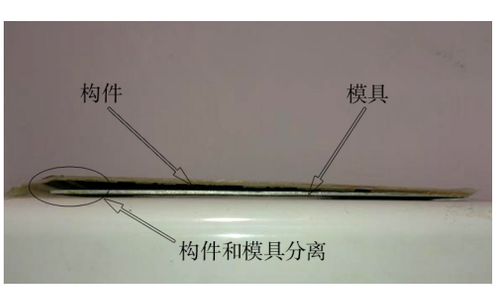
随着第二个保温阶段的结束，固化工艺进入降温阶段，此时三种模具表面状态下获得的构件应变曲线均随温度的降低而不断减小，并且应变变化速率比升温阶段要大，由于在降温时，树脂已固化完全，构件中的应变变化主要是由模具与构件热胀系数不匹配引起的，说明在整个固化过程中，三种实验条件下的模具-构件相互作用均在降温阶段达到最大。这是由于树脂固化完成使构件与模具之间由滑动摩擦状态转变为粘接状态，两者之间所能传递的最大剪切应力显著增大，从而使应变随温度降低而迅速变化，并且从图6中可以看到，脱模布模具表面状态下构件应变降幅也迅速下降，表明树脂的固化显著增强模具—构件相互作用，脱模布也只能部分减小模具热收缩对构件应变的影响。在降温结束后，三个实验中构件中的应变均大幅变化，并且由拉应变转变为压应变，整个降温过程中三条曲线的应变降幅依然呈现出相似的梯度（图6）。说明模具表面状态不仅影响未完全固化构件中的应变变化，在固化完成后的降温阶段，其对构件中的应变变化依然有较大影响。固化结束后三种模具表面状态下构件的变形如图8所示，图中构件并未从模具上拆除。



（a）　Release agent (1 layer) surface condition



（b）　Release agent (3 layers) surface condition



（c）　FEP tool surface condition

图8　三种模具表面状态下固化成型的构件

Fig. 8　Cured part of three tool surface condition

从图8(a)中可以明显看出,一层脱模剂条件下的构件沿纤维方向发生明显翘曲,说明在此实验条件下,模具与构件之间的相互作用非常强烈。而从图8(b)可以看出三层脱模剂模具表面状态下的构件并未发生明显变形,说明脱模剂的涂刷次数能够有效减小模具-构件相互作用,改善构件变形。当模具表面状态为脱模布时,如图8(c)所示,模具与构件在边缘发生了分离,表明外界压力撤除后,在此条件下的模具-构件相互作用非常小,不能维持模具与构件的界面结合从而发生分离,这与前述获得的不同模具表面状态对模具-构件相互作用应变的影响一致。

3 结论

(1)在升温阶段,铺放脱模布能够有效屏蔽模具-构件界面相互作用,使构件在升温阶段的应变很小,而当树脂完全固化,固化工艺进入降温阶段后,脱模布的屏蔽作用减弱,构件会因模具与构件热胀系数不匹配产生压应变。

(2)脱模剂的层数会影响模具-构件相互作用,三层脱模剂模具表面条件下构件中的应变要明显小于一层脱模剂表面条件下构件中的应变。

(3)残余应变主要产生于降温阶段,树脂的固化使模具与构件界面作用加强,能传递更大的剪切应力,并且一层脱模剂模具表面状态下模具与构件之间的相互作用最大,在固化工艺进程结束后,构件发生明显的翘曲变形,翘曲变形以沿纤维方向为主。

参考文献

[1] 陈祥宝,张宝艳,邢丽英. 先进树脂基复合材料技术发展及应用现状[J]. 中国材料进展,2009,28(6):2-12.

[2] KASHTALYAN M, SOUTIS C. Analysis of composite laminates with intra-and interlaminar damage [J]. Progress in Aerospace Sciences,2005(41):152-173.

[3] 王晓洁,张炜,刘炳禹,等. 高性能碳纤维复合材料耐压容器研究进展[J]. 宇航材料工艺,2003,33(4):20-23.

[4] 岳广全,张博明,戴福洪,等. 固化过程中模具与复合材料构件相互作用分析[J]. 复合材料学报,2010,27(6):167-171.

[5] 杨青,刘卫平,晏冬秀,等. 复合材料固化变形预测的理论模型[J]. 材料导报,2015,29(11):65-69.

[6] 丁安心,李书欣,倪爱清,等. 热固性树脂基复合材料固化变形和残余应力数值模拟研究综述[J]. 复合材料学报,2017,34(3):471-485.

[7] 潘永生. 复合材料制品的固化变形研究[J]. 纤维复合材料,2016,33(2):20-23.

[8] KAUSHIK V, RAGHAVAN J. Experimental study of tool-part interaction during autoclave processing of thermoset polymer composite structures [J]. Composites Part A Applied Science & Manufacturing,2010,41(9):1210-1218.

[9] ALBERT C, FERNLUND G. Spring-in and warpage of angled composite laminates[J]. Composites Science & Technology, 2002,62(14):1895-1912.

[10] TWIGG G, POURSARTIP A, FERNLUND G. An experimental method for quantifying tool-part shear interaction during composites processing[J]. Composites Science & Technology, 2003,63(13):1985-2002.

[11] 岳广全,张嘉振,张博明. 模具对复合材料构件固化变形的影响分析[J]. 复合材料学报,2013,30(4):206-210.

[12] 王涛,孙庆,高岩,等. 光纤光栅应变特性及其在槽形梁试验量测中的应用[J]. 铁道建筑,2014(11):37-40.

[13] MULLE M, ZITOUNE R, COLLOMBET F, et al. Thermal expansion of carbon-epoxy laminates measured with embedded FBGS-comparison with other experimental techniques and numerical simulation [J]. Composites Part A Applied Science & Manufacturing,2007,38(5):1414-1424.

[14] ANTONUCCI V, GIORDANO M, CUSANO A, et al. Real time monitoring of cure and gelification of a thermoset matrix [J]. Composites Science & Technology, 2006, 66(16): 3273-3280.

[15] KARALEKAS D, CUGNONI J, BOTSIS J. Monitoring of process induced strains in a single fibre composite using FBG sensor: A methodological study[J]. Composites Part A, 2008, 39(7):1118-1127.

[16] 万里冰,武湛君,张博明,等. 光纤布拉格光栅监测复合材料固化[J]. 复合材料学报,2004,21(3):1-5.

[17] 田恒,王继辉,冀运东,等. 布拉格光栅监测不同厚度方向的固化残余应力[J]. 功能材料,2012,43(19):2671-2674.

[18] JOVEN R, TAVAKOL B, RODRIGUEZ A, et al. Characterization of shear stress at the tool-part interface during autoclave processing of prepreg composites [J]. Journal of Applied Polymer Science,2013,129(4):2017-2028.

[19] ERSOY N, POTTER K, WISNOM M R, et al. An experimental method to study the frictional processes during composites manufacturing[J]. Composites Part A Applied Science & Manufacturing,2005,36(11):1536-1544.

[20] 李雪芹,周玉敬,张子龙,等. 光纤布拉格光栅传感器监测环氧树脂固化收缩研究[J]. 材料工程,2012(8):73-77.