

固化工艺参数对复合材料补片温度场的影响

庞 杰

(中国民用航空飞行学院航空工程学院, 广汉 618307)

文 摘 基于热传导定律和固化动力学理论,建立了热固性树脂基复合材料固化过程的三维有限元模型,通过与文献实验结果比较,验证了该模型具有较高的可靠性。采用该模型计算了 AS4/3501 层合板挖补修理固化过程的温度场和固化度场,并分析了固化温度及升温速率对补片中心点温度场和固化度场的影响。结果表明:在固化反应的起始阶段,固化温度和升温速率对补片温度和固化度的影响很小;随着固化反应的进行,固化温度和升温速率对补片温度和固化度的影响越来越大;在第二次升温阶段初期,固化温度对补片中心点温度的影响又逐渐缩小;在每次保温阶段末期,补片温度和固化度不再受升温速率的影响。

关键词 复合材料, 固化温度, 升温速率, 挖补修理, 数值模拟

中图分类号: TB332

DOI: 10.3969/j.issn.1007-2330.2016.02.002

Effect of Curing Process Parameters on Temperature Field of Composite Patch

PANG Jie

(Aviation Engineering Institute, Civil Aviation Flight University of China, Guanghan 618307)

Abstract Based on the thermal conduct law and curing kinetics theory, a three-dimensional finite element model of thermosetting resin matrix composite was developed during the curing process, the reliability of the developed model is verified by comparing with the experimental results in literature. Based on the model, temperature and curing degree fields of the scarf repaired AS4/3501 composite laminate were calculated during the curing process, effect of curing temperature and heating rate on temperature and curing degree fields of the patch is analyzed. The results indicate that the effect is very small during the initial stage of curing reaction; the effect increase with the curing time; however, the effect decrease with curing time during the initial stage of the second heating stage; the temperature and curing degree of composite patch do not change with heating rate during the final stage of constant temperature period.

Key words Composite, Curing temperature, Heating rate, Scarf repair, Numerical simulation

0 引言

随着机体结构中复合材料用量的激增,关于复合材料结构的挖补修理越来越受到重视。在挖补修理固化过程中,由于固化工艺的改变,以及材料内部复杂的物理化学变化,在挖补修理补片中将产生复杂的温度场和固化度场,这种不均匀的温度场和固化度场是引起挖补修理残余应力和初始缺陷的根本原因^[1]。因此,建立复合材料层合板挖补修理固化过程的温度和固化度分布模型,分析固化工艺参数对补

片内温度和固化度分布规律的影响,对于减小固化残余应力和保证挖补修理质量具有重要意义。

近 30 年来,国内外学者开展了一系列关于复合材料固化过程的数值模拟研究。T. A. Bogetti 等^[2]基于固化热化学反应的耦合关系,采用二维有限差分法分析了边界条件、固化温度和厚度对固化过程的影响;郭章新等人^[3]采用三维有限元法模拟计算了纤维缠绕复合材料固化过程中残余应力的变化规律;元振毅等^[4]采用二维多场耦合模型研究了纤维体积分

收稿日期:2015-10-14

基金项目:国家自然科学基金民航联合基金(U1233202);学院面上项目(XM1307)

作者简介:庞杰,1984 年出生,硕士,主要从事复合材料结构优化设计研究。E-mail:nuaa_pj@163.com

数及材料参数的时变特性对固化过程中温度和固化度等参量的影响; A. Cheung 等^[5]采用三维有限元模型研究了曲面结构固化过程中温度和固化度的分布规律; 张纪奎等^[6]采用三维有限元模型对复合材料的固化过程进行了模拟计算, 并分析了厚度和纤维体积分含量对固化过程的影响; 王晓霞^[7]研究了复合材料固化收缩应力和热应力的形成机制, 并分析了各种参数对内应力和固化变形的影响方式和影响规律。

目前固化过程的数值模拟主要集中在复合材料制造方面, 而关于挖补修理固化过程的数值仿真较少。本文针对复合材料层合板的固化过程建立了三维有限元模型, 在验证模型可靠性的基础上, 计算了复合材料层合板斜面挖补修理固化过程中补片中心点温度和固化度的分布规律, 并分析了固化温度及升温速率对补片中心点温度和固化度历程的影响。

1 热化学数学模型

1.1 热传导方程

在复合材料挖补修理固化过程中, 热补仪的加温历程和树脂基体的固化反应放热决定了挖补修理过程的温度分布, 其中内热源来自胶层和基体树脂的固化放热反应。基于热传导定律和能量平衡关系^[8], 包含内热源的三维瞬态热传导控制方程为:

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

式中, T 为固化过程中瞬时温度; t 为固化反应时间; k_{xx} 、 k_{yy} 、 k_{zz} 为总体坐标系下 x 、 y 、 z 三个方向的热导率; ρ_r 为复合材料的密度; c_p 为复合材料的比热容; \dot{Q} 为热生成率, 即单位时间内单位质量树脂固化反应所产生的热量, 可以表示为:

$$\dot{Q} = \rho v_r H_R \frac{d\alpha}{dt} \quad (2)$$

表 1 AS4/3501-6 热力学和固化动力学参数

Tab. 1 Thermodynamic parameters and curing kinetics parameters of AS4/3501-6

ρ / kg·m ⁻³	c_p / J·(kg·K) ⁻¹	k_{11} / W·(m·K) ⁻¹	$k_{22}=k_{33}$ / W·(m·K) ⁻¹	$A_1/10^9$ min ⁻¹	$A_2/10^9$ min ⁻¹	$A_3/10^5$ min ⁻¹	$H_R/10^5$ J·kg ⁻¹	$\Delta E_1/10^4$ J·mol ⁻¹	$\Delta E_2/10^4$ J·mol ⁻¹	$\Delta E_3/10^4$ J·mol ⁻¹	R / J·(mol·K) ⁻¹
1578	862	4.135	0.4135	2.102	-2.014	1.960	1.986	8.07	7.78	5.66	8.3143

固化工艺曲线如图 1 所示, 分别采用 2 次升温阶段和 2 次保温阶段, 2 次升温速率为 275.37 K/min, 在 389 K 下保温 60 min, 在 450 K 下保温 120 min。采用该模型计算了层合板中心点的温度和固化度历程, 并与文献^[10]中的实验结果进行了比较, 验证结果如图 1 和图 2 所示, 计算结果与实验结果吻合, 从而验证了本文 FORTRAN 子程序和三维有限元模型的可靠性。

式中, H_R 为单位质量树脂完全固化所释放的总热量; v_r 为复合材料的树脂体积分率; α 为树脂的固化度, 表示固化反应进行到 t 时刻的放热量, 固化反应速率 $\frac{d\alpha}{dt}$ 由固化反应动力学方程确定。

1.2 固化反应动力学方程

树脂的固化反应本质上是一个热激活的化学反应, 基于宏观尺度的唯象模型, 动力学方程的数学模型为:

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

式中, $f(\alpha, T)$ 的具体形式由树脂材料体系确定。碳纤维/环氧树脂复合材料 (AS4/3501-6) 符合一种分段动力学模型^[3], 其固化反应动力学方程为:

$$\begin{cases} \frac{d\alpha}{dt} = (K_1 + K_2\alpha)(1-\alpha)(0.47-\alpha), (\alpha \leq 0.3) \\ \frac{d\alpha}{dt} = K_3(1-\alpha), (\alpha > 0.3) \\ K_i = A_i \exp\left(-\frac{\Delta E_i}{RT}\right), (i=1, 2, 3) \end{cases} \quad (4)$$

式中: A_i 和 ΔE_i 分别为树脂固化反应的频率因子和活化能, R 为普适气体常数。

2 模型验证

基于上述热化学数学模型, 本文通过 FORTRAN 编写的用户子程序 HETVAL 实现固化度求解程序与有限元计算数据的交换, 采用有限元逐次迭代的方法求解固化过程的温度和固化度分布。

模型验证算例参考文献^[9], 材料为碳纤维环氧树脂预浸料 AS4/3501-6 层合板, 几何尺寸为 15.24 cm×15.24 cm×2.54 cm, 固化动力学方程为式(4), 表 1 为其热力学参数和固化动力学参数^[10]。

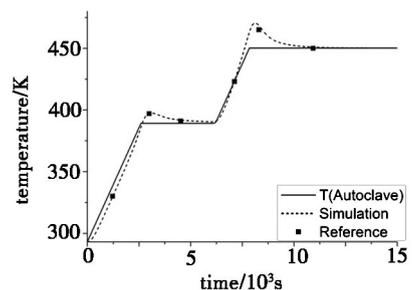


图 1 AS4/3501-6 层合板中心点温度历程

Fig. 1 Temperature profiles at the center point of AS4/3501-6 laminate

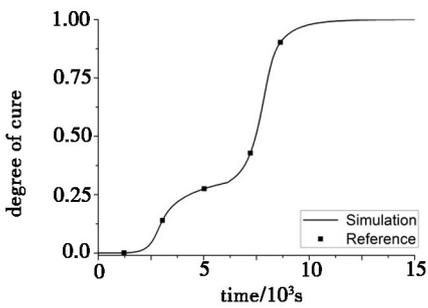


图2 AS4/3501-6 层合板中心点固化度历程

Fig.2 Curing degree profiles at the center point of AS4/3501-6 laminate

3 挖补修理固化过程的数值模拟

挖补修理几何模型见图3,待修理母板尺寸为22.5 cm×7.5 cm×1 cm,损伤长度为5 cm,挖补角为45°,胶层厚度为0.125 cm,附加层尺寸为8 cm×7.5 cm×0.25 cm;母板和补片材料为碳纤维环氧树脂预浸料AS4/3501-6,胶层材料为3501-6树脂,3501-6树脂热力学参数和固化动力学参数参考文献[11];边界条件为:补片上表面和侧面温度与固化工艺温度一致。考虑到几何结构和边界条件的对称性,为了提高数值计算效率,取模型的四分之一进行有限元计算,对称面为绝热边界条件。分别计算了不同固化温度和升温速率下补片中心点的温度和固化度历程。

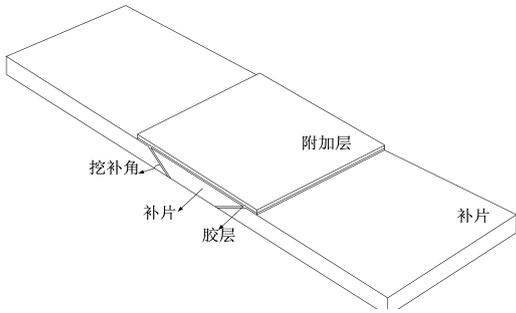


图3 复合材料层合板挖补修理几何模型

Fig.3 Geometry model of scarf repaired composite laminate

3.1 固化温度对温度场和固化度场的影响

改变固化温度数值,其他参数保持不变,图4为三种不同固化温度曲线。不同固化温度下补片中心点的温度和固化度变化历程如图5所示。

在整个固化加热的过程中,补片中心点的温度和固化度随着时间逐渐增大。固化温度越高,固化反应速率越快,补片中心点达到相同固化度所需的时间越短。在固化反应的起始阶段,补片的初始温度相同,热量从补片表面传递到内部需要一定的时间,在这段时间补片内温度和固化度受固化温度的影响很小,补片中心点的温度和固化度在三种固化温度下几乎一样。随着固化反应的进行,热量逐渐传递到补片内部,再加上树脂固化反应放出的热量不能及时地释放

出去,所以补片内温度和固化度受固化温度的影响越来越大,不同固化温度对补片内温度场和固化度场的影响程度逐渐拉大,中心点温度逐渐拉开的时间大约是3 100 s,而中心点固化度逐渐拉开的时间大约是3 700 s,固化度受固化温度的影响滞后于温度受固化温度的影响。经历第一次保温之后,保温温度越低,进入第二次升温阶段的时间越早,在第二次升温的初始阶段,固化温度对补片中心点温度的影响又逐渐缩小,中心点温度趋于一致的时间大约是8 000 s。

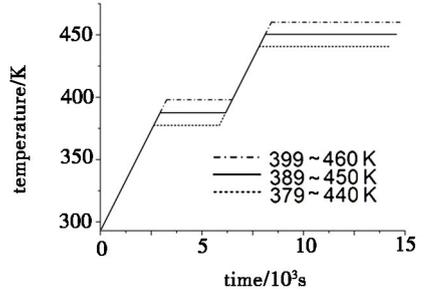
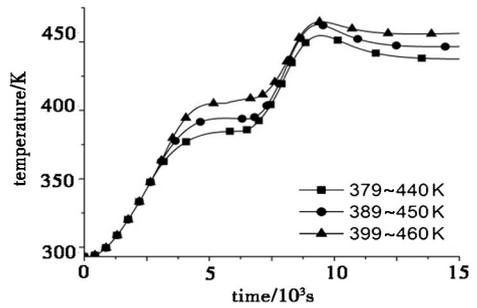
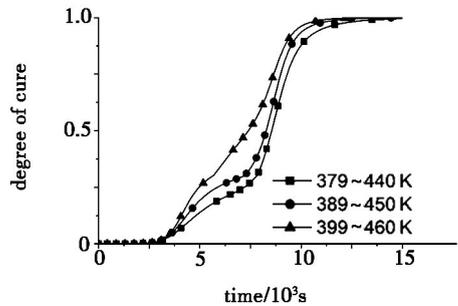


图4 不同固化温度曲线

Fig.4 Curves of different curing temperature



(a) Curing temperature profiles



(b) Curing degree profiles

图5 不同固化温度下补片中心点温度和固化度历程

Fig.5 Center curing temperature and degree profiles of various curing temperature

3.2 升温速率对温度场和固化度场的影响

改变升温速率数值,其他参数保持不变,图6为三种不同升温速率曲线。不同升温速率下挖补修理固化过程中补片中心点的温度和固化度变化历程如图7所示。

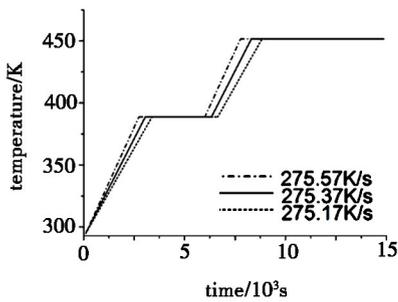
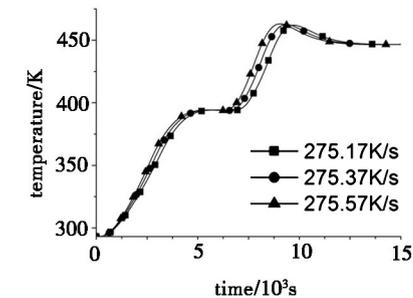


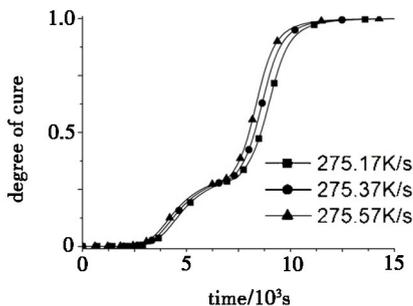
图6 不同升温速率曲线

Fig. 6 Curves of different heating rate

升温阶段初期,补片的初始温度相同,且热量从补片表面传递到内部需要一定的时间,在这段时间内补片内温度和固化度受升温速率的影响很小,补片中心点的温度和固化度在三种升温速率下几乎一样。升温阶段后期,随着温度升高,热量逐渐从补片表面传递到内部,同一时刻中心点的温度和固化度随着升温速率的增加而增加。当进入保温阶段之后,固化工艺温度保持不变,随着时间的延长,升温速率造成的影响逐渐消失,在保温阶段末期,补片内温度和固化度不再受升温速率的影响,补片中心点的温度和固化度趋于一致。



(a) Curing temperature profiles



(b) Curing degree profiles

图7 不同升温速率下补片中心点温度和固化度历程

Fig. 7 Center curing temperature and degree profiles of various heating rate

4 结论

(1) 基于热传导和固化动力学理论,编写了用于固化过程热化学分析的子程序,并对热固性树脂基复

合材料层合板固化过程进行了三维数值模拟,计算结果与文献结果吻合很好,表明本文计算方法具有较高的可靠性。

(2) 在挖补修理固化过程的起始阶段,固化温度对补片内温度和固化度的影响很小,随着固化反应的进行,固化温度对补片内温度和固化度的影响越来越大,在第二次升温阶段初期,固化温度对补片中心点温度的影响又逐渐缩小。

(3) 升温速率只是影响升温阶段后期的温度场和固化度场,补片中心点的温度和固化度随着升温速率的增加而增大,在保温阶段末期,补片内温度和固化度不再受升温速率的影响。

参考文献

- [1] 谭华,晏石林. 热固性树脂基复合材料固化过程的三维数值模拟[J]. 复合材料学报, 2004, 21(6): 167-172.
- [2] BOGETTI T A, GILLESPIE J W. Two-dimensional cure simulation of thick thermosetting composites[J]. Journal of Composite Materials, 1991, 25(3): 239-273.
- [3] 郭章新,韩小平,李金强,等. 纤维缠绕复合材料固化过程残余应力/应变的三维数值模拟[J]. 复合材料学报, 2014, 31(4): 1006-1012.
- [4] 元振毅,王永军,张跃,等. 基于材料性能时变特性的复合材料固化过程多场耦合数值模拟[J]. 复合材料学报, 2015, 32(1): 167-175.
- [5] 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.
- [6] 张纪奎,关志东,酆正能,等. 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.
- [7] 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.
- [8] 左德峰,朱金福,黄再兴. 树脂基复合材料固化过程中温度场的数值模拟[J]. 南京航空航天大学学报, 1999, 31(6): 701-705.
- [9] KIM Y K, WHITE S R. Viscoelastic analysis of processing induced residual stresses in thick composite laminates [J]. Mechanics of Composite Materials and Structures, 1997, 4(4): 361-387.
- [10] LEE W I, LOOS A C, SPRINGER G S. Heat of reaction, degree of cure, and viscosity of Hercules 3501-6 resin[J]. Journal of Composite Materials, 1982, 16(6): 510-520.
- [11] SHIN D D, HAHN H T. Compaction of thick composites: simulation and experiment[J]. Polymer Composites, 2004, 25(1): 49-59.