复合材料学报 Acta Materiae Compositae Sinica
第 26 卷 第 1 期 2 月 2009 年
Vol. 26 No. 1 February 2009

文章编号：1000-3851(2009)01-0174-05

热固性复合材料固化过程三维有限元模拟和变形预测

张纪奎，郦正能*，关志东，程小全，王 军
（北京航空航天大学 航空科学与工程学院 飞机系，北京 100083）

摘 要： 分析了复合材料热固化过程中各种复杂的物理化学变化之间的相互影响，在此基础上建立了复合材料固化过程数值模拟和固化变形预测的三维有限元分析模型。采用整体-子模块方法将固化过程分为热-化学、流动-压实和应力-变形三个相对独立的子模块。热-化学模块的控制方程基于 Fourier 热传导方程和树脂固化动力学方程建立，解决了温度和固化度之间的强耦合问题。流动-压实模块的控制方程基于 Darcy 定律和有效应力原理建立，反映了树脂流动和纤维网络紧密压实之间的流固耦合关系。应力-变形模块建立了考虑热载荷和固化收缩载荷时复合材料层合板的有限元方程。各模块之间的相互作用通过它们之间的数据交换来实现，以树脂在固化过程中的凝胶点和玻璃化转化点为判断依据确定是否运行各模块及其子程序。典型结构的计算结果与实验对比验证了本文三维有限元模型的有效性。

关键词： 热固性复合材料；固化变形；耦合关系；有限元分析
中图分类号： TB330.1 **文献标志码：** A

Three-dimensional finite element simulation and prediction for process-induced deformation of thermoset composites

ZHANG Jikui, LI Zhengneng*, GUAN Zhidong, CHENG Xiaoquan, WANG Jun
(Department of Airplane, School of Aeronautic Science and Engineering, Beijing University of Aeronautics and Astronauts, Beijing 100083, China)

Abstract: On the basis of analyzing the interrelationship of the complex physical and chemical phenomena in the composite cure process, a three-dimensional (3D) finite element analysis (FEA) model was developed for simulating the process and predicting the process-induced deformation. By an integrated sub-model approach, the cure process was divided into three relatively independent modules: thermo-chemical, flow-compaction and stress-deformation. The thermo-chemical module was based on the Fourier's heat conduction and cure kinetics equation with the consideration of the coupling relation between temperature and cure degree. In the flow-compaction module, Darcy's law and effective stress principle were employed to describe the interaction between resin viscous flow and fiber bed consolidation. In the stress-deformation module, multi-layer complex composite laminates subjected to thermal load and resin cure shrinkage were analyzed by the 3D finite element method. Which module and its subroutines should be called was determined by resin gelation and vitrification. The interaction of these three modules is realized through exchanging the data between them. The representative structure simulation comparison with experiment verified the 3D FEA model in this paper.

Keywords: thermoset composites; process-induced deformation; coupling relationship; FEA

复合材料在固化过程中产生的变形是其成本高居不下和质量不稳定的主要原因之一。随着复合材料结构整体化程度的日益提高，依靠传统的经验和小尺寸试件试验方法难以从根本上解决目前生产中存在的质量问题。采用数值模拟方法研究复合材料结构固化过程和预测固化变形，对于缩短研制周期，降低生产成本，实现复合材料结构的整体化和设计/制造一体化具有重要意义。

收稿日期： 2008-01-23；**收修改稿日期：** 2008-04-02
基金项目： “凡舟”基金资助项目(20050504)
通讯作者： 郦正能，教授，主要从事飞机结构设计、复合材料力学、耐久性和损伤容限设计研究 E-mail：zjk@buaa.edu.cn

复合材料固化过程发生树脂基体交联反应、树脂固化收缩、树脂在固化压力下的流动和纤维网络的变形、树脂由固态－液态－固态的相变过程，以及模具与复合材料结构的相互作用等一系列复杂的物理化学变化，这些现象之间存在复杂的相互影响和耦合作用。从目前树脂基复合材料残余应力和固化变形的研究状况来看，通过实验与数值模拟相结合的研究方法，对层合平板固化变形的形成机制和控制方法的研究已经取得了一定进展[1-4]。对于典型的 L 形或 C 形结构件固化变形的影响因素仍然存在一些分歧[5-8]。目前，对固化变形影响因素分析不够全面和各种影响因素之间的交织作用是产生分歧的主要原因，需要对整个固化过程建立更为全面和准确的模型来反映众多因素之间的互相影响。

随着复合材料结构低成本要求的提出和整体化程度的提高，采用数值模拟方法研究大型复杂结构固化过程中的固化变形和尺寸控制显得必要而紧迫。目前只有少数研究者[9-10]对较为复杂的材料结构进行了试验和数值模拟研究，但采用的仍是二维或简化的二维与三维相结合的方法，这些方法都不能直接应用于大型整体复合材料固化变形的预测和分析。

本文中首先分析了复合材料热固化变形的形成机制，在此基础上将固化过程分为热-化学、流动-压实以及残余应力-变形三个子模块，分别研究热传导和固化动力学、树脂在罐压下的流动和分布以及结构残余应力和固化变形，分别建立各模块的三维有限元控制方程。耦合关系较强的现象在同一模块中考虑，影响较弱的则通过各模块之间的数据交换来体现。从而建立可综合考虑各种因素、可直接应用于大型复杂复合材料结构固化过程模拟和固化变形预测的三维有限元模型。

1 复合材料热固化变形机制分析

复合材料在生产工艺过程中引起的固化变形可以分为两大类：一类是结构厚度变化的不稳定性，另一类是层合板壳结构翘曲和回弹问题。

固化过程中多余树脂在固化压力的作用下流出，树脂的流出量决定了结构件最终的厚度。研究结果表明[11-14]：固化压实过程是个复杂的物理化学过程，它不但受到温度、压力、加压时机、吸胶方式等工艺因素的影响，还受到纤维/树脂体系的种类、层板厚度、铺层以及结构几何形状等设计因素的影响。

复合材料制造过程中的翘曲和回弹是由其本身的各向异性特性和残余应力分布的不均匀性决定的。残余应力分布的不均匀性主要由下列因素引起：(1) 温度和固化度分布不均匀所引起的材料力学性能的不均匀；(2) 树脂流动引起的树脂分布的不均匀；(3) 模具和结构件之间的相互作用。

要数值模拟树脂基复合材料固化过程中厚度变化以及翘曲和回弹等固化变形，所建立的模拟方法必须准确反映固化过程中的各种物理化学现象。其中包括：(1) 热压罐和结构件温度变化与树脂放热化学反应之间的耦合关系；(2) 树脂流动和纤维网络压实之间的耦合关系；(3) 热载荷和固化收缩载荷下结构的变形；(4) 上述各种现象之间的相互影响。

2 固化过程三维有限元模型的建立

复合材料固化过程伴随着一系列复杂的物理化学反应，本文中采用模块化方法[3, 15]将固化过程分为 3 个相对独立的模块，即热-化学、流动-压实和应力-变形模块。耦合关系较强的现象放在同一模块中考虑，相互影响较弱的则通过各模块之间的数据交换来体现。

2.1 热-化学模块

复合材料固化过程中温度和固化度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。温度和固化度之间的耦合关系可以用下式来表示：

$$\begin{cases} k_{xx}\dfrac{\partial^2 T}{\partial x^2}+k_{yy}\dfrac{\partial^2 T}{\partial y^2}+k_{zz}\dfrac{\partial^2 T}{\partial z^2}+\dot{q}=\rho c_p\dfrac{\partial T}{\partial t} \\ \dot{q}=\rho(1-V_{\mathrm{f}})H_{\mathrm{R}}\dfrac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} \\ \dfrac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t}=A\exp(-\Delta E/RT)\alpha^m(1-\alpha)^n \end{cases}$$

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 3 个主方向的热传导系数，$\dot{q}$ 为热生成率，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 为固化度，表示固化反应进行的程度；A 为频率因子；ΔE 为活化能；R 为普适气体常数；m、n 为反应级数。上式有限元离散方程见文献[16]。

2.2 流动-压实模块

树脂处于可流动状态时，多余树脂在固化压力

作用下自预浸料内流出，层合结构得以巩固压实，这一过程称为层合板的紧密压实。有关树脂流动和固化压实的早期工作在 Springer[15] 的领导下完成，他认为压力仅由树脂承担，压缩是逐层进行的。后来 Gutowski[17] 提出了纤维网络的形变模型，该模型假设固化压力由纤维网络和树脂共同承担，并且纤维网络承担的载荷随纤维体积含量的增加而增加。这两种模型在纤维体积含量较低时基本相同，但纤维体积含量较高时 Gutowski 模型更为精确。本文数值模型在 Gutowski 模型基础上，采用多孔介质饱和渗流方程和有效应力原理建立，控制方程式为

$$\begin{cases} v_i = -\dfrac{s_{ii}}{\mu}\dfrac{\mathrm{d}P_{\mathrm{r}}}{\mathrm{d}x_i},\ i = 1,\ 2,\ 3 \\ \sigma = \overline{\sigma} + P_{\mathrm{r}} \end{cases}$$

式中：σ 为外界施加压力；$\overline{\sigma}$ 为纤维网络承担的有效应力；P_{r} 为树脂压力；x_i 为沿 i 方向的坐标；v_i 为树脂在 i 方向的流动速度；s_{ii} 为 i 方向的渗透率；μ 为树脂黏性。

2.3　应力-变形模块

残余应力和固化变形的数值模拟分为两个阶段：第 1 阶段为固化工艺过程中残余应力的数值模拟，在此过程中结构被模具约束，沿模具表面法线方向的位移自由度被约束，沿模具表面方向的约束情况视模具表面情况确定。残余应力由于温度变化和固化交联反应所产生的收缩应变而产生；第 2 阶段为结构脱模后固化变形的预测，结构脱离模型的约束，残余应力部分释放而产生固化变形。正交各向异性复合材料热应力问题总体坐标下单元的刚度方程为

$$K^{\mathrm{e}}\delta^{\mathrm{e}} = F^{\mathrm{e}} + F_T^{\mathrm{e}} + F_\alpha^{\mathrm{e}}$$

式中：δ^{e} 为单元节点位移向量；K^{e} 为单元刚度矩阵；F_T^{e} 为等效节点温度载荷向量；F^{e} 为单元载荷向量；F_α^{e} 为固化收缩引起的单元载荷，下标 α 为固化度。需要特别注意的是，在树脂凝固之前处于液态，不会引起残余应力。

2.4　各模块之间的相互影响和调用关系

2.4.1　各模块之间相互影响关系的实现

固化过程各模块描述的物理化学现象可能是同时发生的，他们之间存在着一定的相互影响，这种影响通过各模块之间的数据交换来体现。图 1 为各模块之间的数据交换关系示意图。热-化学模块温度和固化度变化在当前时间步内就会对另外两个模块产生影响。流动-压实模块的求解结果对应力-变形模块当前时间步即产生影响，对热-化学模块的影响则在下一时间步考虑。应力-变形模块的求解结果对其他两个模块的影响在下一个时间步考虑。

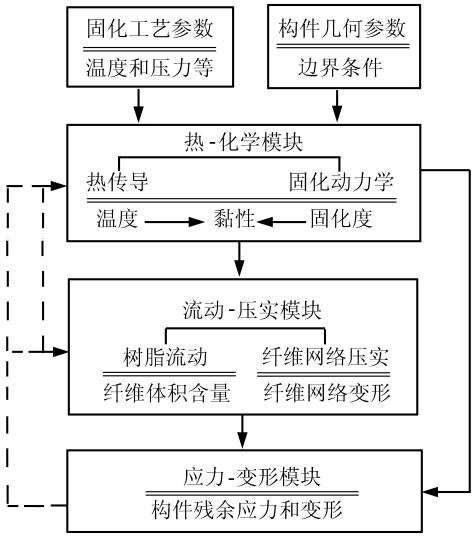

图 1　3 个模块之间的数据交换关系示意图

Fig. 1　Scheme of exchanging data between three modules

2.4.2　不同时刻各模块程序的调用关系

采用凝胶点 α_{gel} 和玻璃化转变温度 T_{g} 作为固化进程的两个判断依据：凝胶点是树脂力学性能增长和残余应力产生的开始点，同时是树脂流动的终止点；玻璃化转化温度后，材料处于完全弹性状态，力学性能趋于稳定，温度应变和固化收缩应变与温度和固化度成线性关系。每个计算时间步开始之前首先更新温度和固化压力等工艺参数，在求解热-化学模块的控制方程后根据当前固化度与凝胶点的关系确定是否调用流动-压实模块；根据当前温度 T 与玻璃化转化温度 T_{g} 的关系决定是否调用材料力学性能数据更新和固化收缩子程序。

3　算例验证

本文中算例采用 Hercules 公司 AS4/3501-6 预浸料，单层厚度 0.16 mm，树脂体积含量 36%，剖面形状如图 2(a)所示，单向 0°铺层，厚度 L=8 mm，拐角处圆弧半径 R=30.2 mm，贴模时夹角为 90°，脱模后夹角为 90°+θ，θ 为 L 形复合材料固化产生的回弹角。

在 3 个分析模块中，均采用三维八节点等参数单元和相同的单元划分，以方便各模块之间的数据交换。图 2(b)为单元划分图，图中 $ABCD$ 所确定的面称为外表面，与吸胶膜接触(凸模)；与之相对

的面称为内表面，与模具接触；结构件关于 EGH 确定的平面对称，称为对称面。各模块边界条件和施加载荷如下。

热-化学模块：在结构件外表面施加对流边界条件，环境温度即为热压罐温度；其它面施加绝热边界条件。

流动-压实模块：由于模具的约束作用，限制结构件内表面的法向位移，固定 E 点以限制结构的刚体位移；外表面施加热压罐压力 P_a，并且完全由纤维网络承担，即 $\sigma=P_a$，$P_r=0$；树脂只能由上表面流向吸胶膜，其它面因为真空带的密封作用，没有树脂流出。

应力-变形模块：在拐角处对称面上施加对称边界条件，固定 E 点以限制结构刚体位移。

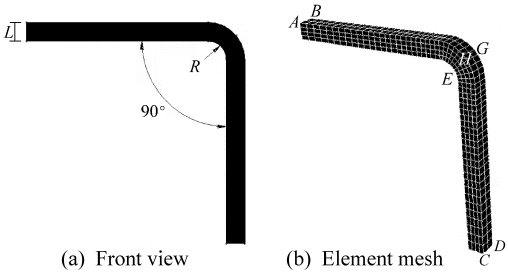

图 2　L 形结构的剖面正视图及单元划分图

Fig. 2　Front view and element mesh of L structure

3.1　温度和固化度预测

图 3 为节点 A 和 E 处温度和固化度随时间的变化曲线。由图 3 可见，A、E 两节点温度和固化度随时间的变化几乎一致，并且温度与热压罐温度基本一致，只是在 120 min 左右第 2 个保温平台开始的一段时间内略高于热压罐温度。这是因为本文中计算的层合板厚度较小，热量在厚度方向传导较快，因此温度沿厚度方向分布较均匀。对照温度和固化度曲线可知，在固化初期，树脂交联反应速率缓慢，放热量很小，层合板温度与热压罐温度几乎一致；随着温度的升高，交联反应速率逐渐加快，在 120 min 左右，固化交联反应迅速进行，放热量迅速增加，层合板温度高于热压罐温度并达到最大值；此后反应速度迅速减小，固化反应 200 min 基本完成，固化度趋向于 1，层合板温度与热压罐趋于相同。

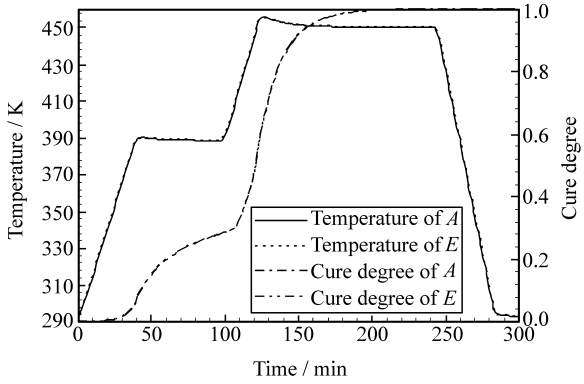

图 3　AS4/3501-6 L 形结构温度和固化度随时间的变化关系

Fig. 3　AS4/3501-6 L structure cure temperature and cure degree vs time curves

3.2　纤维体积含量和层板压缩厚度预测

图 4 为 AB 与 EHG 截面压缩厚度本文数值模拟计算与文献[18]实验结果对比以及 AB 与 EHG 截面树脂含量对比。由图 4(b)可得：(1) 截面 AB 比截面 EHG 处的纤维体积含量高。结合图 4(a)可见，对于单向层合板，平直部分与拐角处压缩厚度并不相同，平直部分压缩厚度相对较大，拐角处相对较小，这样拐角处纤维体积含量比平直部分相对要低，造成这一现象的主要原因是拐角处纤维的承

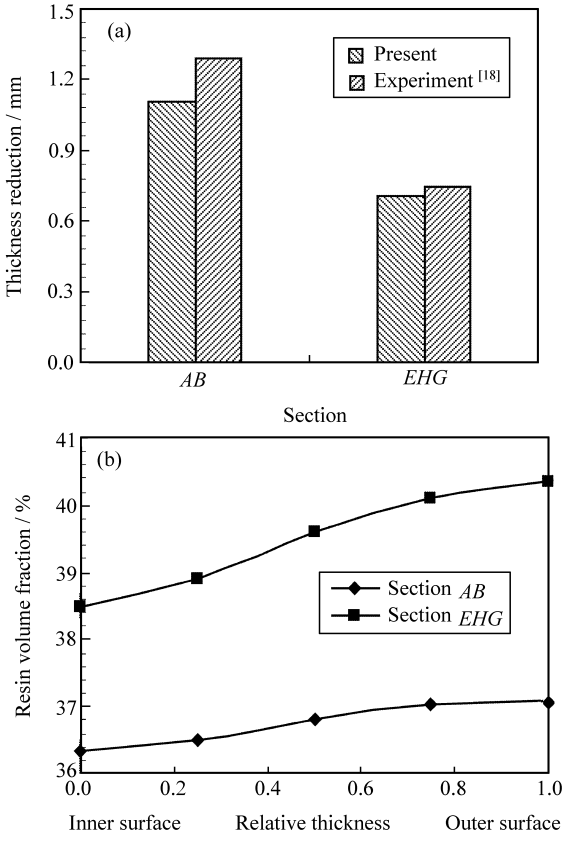

图 4　AS4/3501-6 L 形结构平直和拐角处的压缩厚度与纤维体积含量

Fig. 4　AS4/3501-6 L structure thickness reduction and fiber volume fraction comparison of flat and angle section

载作用减小了树脂基体所承受的压力。(2) 从内表面到外表面纤维体积含量逐渐增大，即模具面到吸胶膜面纤维体积含量逐渐增大。

3.3　L 形层合板回弹变形预测

表 1 为采用 Radford[19] 单向层合板回弹角预测公式、本文中有限元计算结果以及文献[18]试验结果的对比，其中回弹角为负表示层合板夹角小于 90°。Radford 公式仅考虑了温度变化引起的变形，误差最大；本文中有限元方法考虑了温度变化和树脂分布不均引起的变形，但由于模具计算参数不全，没有考虑模具与结构件之间的相互作用，故计算结果比实验值小，相对误差为 11.7%。本文的计算结果与经验公式的预测结果及实验值的比较验证了本文计算程序的正确性。

表 1　AS4/3501－6 L 形结构预测与文献试验和计算回弹角对比

Table1　The simulated L structure spring-in angle comparison with experiment and calculated result

Method	Spring-in angle/(°)	Relative error/%
Radford's prediction[19]	−0.504	34.5
FEA	−0.680	11.7
Experiment[18]	−0.770	0.0

4　结　论

(1) 建立了热固性树脂基复合材料固化过程模拟和固化变形预测的三维有限元模型。该模型可以反映固化过程中复杂物理和化学变化之间的强弱耦合关系。

(2) 典型算例计算结果表明了本文三维有限元模型对于固化过程模拟和固化变形预测的有效性。另外，本文三维分析模型基于通用有限元程序开发，可直接应用于大型复杂复合材料结构固化过程模拟和变形计算，对于整体结构的设计制造和工艺优化具有重要意义。

参考文献：

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

[2] Cowley K C, Beaumont P W R. The measurement and prediction of residual stresses in carbon-fibre/polymer composites [J]. Composite Science and Technology, 1997, 57(11): 1445-1455.

[3] Johnston A, Vaziri R, Poursartip A. A plane strain model for process-induced deformation of laminated composite structures [J]. Journal of Composite Materials, 2001, 35(16): 1435-1469.

[4] Huang X G, Gillespie J W, Bogetti T A. Process induced stress for woven fabric thick section composite structures [J]. Composite Structures, 2000, 49(3): 303-312.

[5] Wiersma H W, Peeters L J B, Akkerman R. Prediction of springforward in continuous-fibre/polymer L-shaped parts [J]. Composites Part A, 1998, 29(11): 1333-1342.

[6] Radford D W, Rennick T S. Separating sources of manufacturing distortion in laminated composites [J]. Journal Reinforced Plastics and Composites, 2000, 19(8): 621-641.

[7] Fernlund G, Rahman N, Courdji R, et al. Experimental and numerical study of the effect of cure cycle, tool surface, geometry and lay-up on the dimensional fidelity of autoclave-processed composite parts [J]. Composites Part A, 2002, 33(3): 341-351.

[8] Stephan A, Schwinge E, Muller J, et al. On the springback effect of CFRP stringers: An experimental, analytical and numerical analysis [C]// Proceedings of the 28th International SAMPE Technical Conference. Seattle, Washington: SAMPE, 1996: 245-254.

[9] Jain L K, Hou M, Ye L, et al. Spring-in study of the aileron rib manufactured from advanced thermoplastic composite [J]. Composites Part A, 1998, 29(8): 973-979.

[10] Fernlund G, Osooly A, Poursartip A, et al. Finite element based prediction of process-induced deformation of autoclaved composite structures using 2D process analysis and 3D structural analysis [J]. Composite Structures, 2003, 62(2): 223-234.

[11] 龚　颖，张佐光，顾轶卓，等. 热压工艺参数对单向复合材料层板密实状态的影响[J]. 复合材料学报，2006，23(1)：12-16.
Gong Ying, Zhang Zuoguang, Gu Yizhuo, et al. Effects of hot pressing process on fiber compaction of unidirectional composite laminates [J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2006, 23(1): 12-16.

[12] Li M, Charles L, Tucker Ⅲ. Modeling and simulation of two-dimensional consolidation for thermoset matrix composites [J]. Composites Part A, 2002, 33(6): 877-892.

[13] 陈　萍，李宏运，陈祥宝. 铺层方式对织物渗透率的影响[J]. 复合材料学报，2001，18(1)：30-33.
Chen Ping, Li Hongyun, Chen Xiangbao. Effect of layers on permeability [J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2001, 18(1): 30-33.

[14] Hubert P, Poursartip A. Aspects of the compaction of composite angle laminates: An experimental investigation [J]. Journal of Composite Materials, 2001, 35(1): 2-26.

[15] Loos A C, Springer G S. Curing of epoxy matrix composites [J]. Journal of Composite Materials, 1983, 17(2): 135-169.

[16] 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 Jikui, Guan Zhidong, Li Zhengneng. Three-dimensional finite element analysis for the temperature field of thermoset composites during cure process [J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2006, 23(2): 175-179.

[17] Gutowski T G. A resin flow/fiber deformation model for composites [J]. SAMPE Quarterly, 1985, 16(4): 58-64.

[18] Naji M I, Hoa S V. Curing of thick angle-bend thermoset composite part: Curing cycle effect on thickness variation and fiber volume fraction [J]. Journal Reinforced Plastics and Composites, 1999, 18(8): 702-723.

[19] Radford D W. Volume fraction gradient induced warpage in curved composite plates [J]. Composite Engineering, 1995, 5(7): 923-934.