复 合 材 料 学 报　　第21 卷　第5 期　10 月　2004 年
ACTA MATERIAE COMPOSITAE SINICA　　Vol. 21　No. 5　October　2004

文章编号: 1000-3851(2004) 05-0134-06

复合材料RTM 成型工艺固化过程三维数值模拟

戴福洪*, 武湛君, 张博明, 杜善义
(哈尔滨工业大学 复合材料研究所, 哈尔滨150001)

摘　要:　复合材料RTM 成型工艺固化过程数值模拟本质上是求解瞬态热传导和固化动力学耦合方程。本文中以控制体积技术将来自放热化学反应的非线性热源项处理成节点集中载荷, 并采用有限元方法求解。以厚板构件的二维数值模拟与文献中结果比较证明了本文中方法的正确性, 并讨论了厚度对温度分布的影响。对带孔圆筒形构件进行了算例研究, 结果表明: 本文方法在处理涉及复杂形状的问题时也具有良好稳定性与可靠性。

关键词:　固化; 数值模拟; 有限元; RTM
中图分类号:　TB 332; TB 330. 1　　**文献标识码:** A

THREE DIMENSIONAL CURE SIMULATIONS IN RESIN TRANSFER MOLDING PROCESS FOR COMPOSITES MANUFACTURING

DAI Fuhong*, WU Zhanjun, ZHANG Boming, DU Shanyi
(Center for Composite Materials, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

Abstract:　The cure simulation is essentially to solve the coupled equations involved in the transient heat transfer and the cure kinetics of the resin. In this paper, the internal heat generation caused by the exothermic cure reaction was treated as the nodal lumped load with the help of the control volume technique. The finite element method (FEM) was employed to solve the pertinent equations. The numerical example of a thick plank solved with the two dimensional FEM was compared with other researchers and good agreement was obtained. A three dimensional simulation for a cylinder with a hole was presented. The results show that the present procedure is numerically stable and reliable when the complex shape problems are involved.

Keywords:　cure; numerical simulation; finite element method; resin transfer molding (RTM)

RTM 工艺作为一种先进的复合材料成型工艺, 以成本低、成型速度快、高质量的制造特点和先进的工艺形式而受到人们的广泛重视。RTM 工艺是在一定的温度及压力下将树脂注入预先置有纤维预制体的模具中, 待树脂充分浸润增强纤维后, 再固化成型[1]。

固化工艺曲线的选择和设计是影响产品质量的重要因素。树脂固化过程中发生化学反应, 复合材料内部的温度分布不仅依赖于模具提供的外热源, 还与树脂固化反应的放热量有关。RTM 工艺固化过程的温度分布本质上是一个具有非线性热源的热传导问题, 其中的热源来自于树脂的放热化学反应。放热反应可以导致复合材料局部温度较高, 而形成复杂的温度梯度分布, 结果将导致非均匀固化。非均匀固化可以导致残余应力的发展而影响复合材料制品的质量。因此, 选择合理的固化工艺曲线成为复合材料生产者十分关心的问题, 而固化过程数值模拟为人们深刻理解各种参数对固化过程的影响以及优化固化工艺曲线提供了一种有效的技术手段[2]。

RTM 工艺固化过程数值模拟主要是预测固化过程中复合材料内部的温度场和固化度场的时间历程, 以辅助设计合理的固化曲线, 尽量避免形成较大的温度和固化梯度。Antonucci[3] 忽略层板长度和宽度方向上的温度变化, 建立了计算厚度方向上热梯度的数学模型, 并给出了避免形成较大热梯度的优化算法。谢怀勤等[4] 对模压成型工艺的温度与固化度场进行了模拟研究。左德峰等[5] 对复合材料

收稿日期: 2003-09-24; 收修改稿日期:2003-12-22
基金项目: 国家自然科学基金资助项目(项目编号:10372027)
通讯作者: 戴福洪, 博士研究生, 研究方向为: 复合材料液体成型工艺数值模似与在线监测　E-mail: fuhongdai@163.com

层板进行了二维数值模拟研究，讨论了板厚、升温速率对温度分布的影响。Bogetti[6,7] 用贴体坐标方法结合有限差分技术对厚截面构件进行了二维数值模拟研究，并结合固化过程模拟进行了残余应力分析。文献[8，9] 将有限元方法和控制体积技术结合，利用通用有限元软件包LUSAS 研究了拉挤工艺固化过程。Liu[10] 未考虑树脂流动与压实作用，利用通用有限元程序对热压釜工艺固化过程进行了树脂模拟。而Blest[11] 采用移动网格技术求解树脂流动、热传导和固化反应耦合方程组，对热压釜工艺固化工程进行了数值研究。

以上的固化过程数值模拟研究仅文献[7] 是三维的，但针对是热压釜工艺，其余均未考虑三维的情况，而且这些文献是针对形状较规则的层板类构件的。RTM 工艺特点是适合生产复杂形状构件，这就需要开发三维的数值模拟程序来模拟工艺过程[12]。Choe[13] 用27 节点的六面体单元进行了RTM 工艺固化过程数值模拟研究。本文中将有限元方法与控制体积技术结合，首先利用二维模拟与文献中研究结果比较证明本文中方法的正确性，然后利用8 节点的六面体单元对一复杂形状构件进行了三维数值模拟。

1 数学模型与数值解法

1.1 数学模型

树脂基复合材料的热固化成型是一个力、热与化学反应相互耦合的过程。固化阶段树脂基本不发生流动，忽略对流传热影响，则根据Fourier 热传导定律和能量平衡关系有能量守恒方程[3~5]：

$$\rho C_{pc}\frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(K_c\nabla T) + (1-f)q_r \qquad (1)$$

式中：ρ、C_{pc}、K_c 分别为复合材料等效的密度、比热和热导率张量，可按照混合律来确定[6]：

$$\rho = f\rho + (1-f)\rho$$

$$C_{pc} = \frac{f\rho C_{pf} + (1-f)\rho C_{pr}}{\rho}$$

$$K_c = \frac{K_f K_r \rho}{f\rho K_f + (1-f)\rho K_r} \qquad (2)$$

其中：f 为纤维体积分数；下标r 表示树脂，f 表示纤维，c 表示复合材料。内部热源项q_r 为树脂发生交联反应放出的热量，可以表示为

$$q_r = \rho H_r\frac{d\alpha}{dt} \qquad (3)$$

式中：ρ 为树脂密度；H_r 为固化反应完成时单位质量树脂放出的总热量；$d\alpha/dt$ 为树脂固化率；α 为固化度。

常用的固化反应动力学模型有自催化和n 级反应模型。本文中采用的方程(4.1) 和方程(4.2) 两种化学动力学模型属于自催化反应模型，分别取自文献[3] 和文献[9]，而相应的固化工艺制度也取自这两文献。方程(4.1) 用来描述聚酯树脂的化学动力学行为，而方程(4.2) 用来描述环氧树脂的化学动力学行为。

$$\frac{d\alpha}{dt} = k_0\exp(-\Delta E_c/RT)\alpha^m(1-\alpha)^n \qquad (4.1)$$

$$\frac{d\alpha}{dt} = (k_1 + k_2\alpha^m)(1-\alpha)^n \qquad (4.2)$$

其中：

$$k_1 = A_1\exp(-\Delta E_1/RT)$$

$$k_2 = A_2\exp(-\Delta E_2/RT)$$

式中：R 为普适气体常数；T 为温度；k_0，A_1，A_2，ΔE_c，ΔE_1，ΔE_2 为实验确定的常数。

1.2 数值解法

根据变分原理，引入虚温度(δT)，并对方程(1) 做体积积分，则方程(1) 成为

$$\int_V \rho C_{pc}\frac{\partial T}{\partial t}\delta T\,dV = \int_V(\nabla(K_c\nabla T) + (1-f)q_r)\delta T\,dV \qquad (5)$$

利用有限元方法离散方程(5)，单元内任意点温度可由节点温度表示为

$$T = \sum_{i=1}^{m} N_i T_i \qquad (6)$$

式中：N_i 和T_i 分别为单元形函数和第i 节点的温度；m 为单元包含的节点个数，对应二维四边形单元为4，对应三维六面体单元为8。采用这两种线性插值单元便于将单元分布式体积载荷集中成节点集中载荷。

将方程(6) 代入方程(5)，经过一系列推导，则最后的离散方程可以写成如下形式：

$$[C]\{T\} + [K]\{T\} = \{F\} \qquad (7)$$

式中：$[C]$ 是比热矩阵；$\{T\}$ 是节点温度向量；$[K]$ 是热导率矩阵；$\{F\}$ 是热载荷向量。它们分别由下列各式来确定：

$$[C] = \int_V \rho C_{pc} N_i N_j\,dV \qquad (8.1)$$

$$[K] = \int_V(\nabla N_i K_c \nabla N_j)\,dV \qquad (8.2)$$

$$\{F\} = \int_V N_i(1-f)q_r\,dV \qquad (8.3)$$

$$\{T\} = \frac{\partial T}{\partial t} \qquad (8.4)$$

式(8.3) 是与固化反应放热相耦合的非线性热源项，具体程序编制中要将其在单元内做积分而形成节点载荷。文献[7] 利用节点控制体积方法来计算等效节点集中载荷，这种方法可以避免对单元上的分布式体积载荷做积分，本文中也采用该方法处理热源项。有限元网格和控制体积构成如图1所示。控制体积j 中树脂体积为:

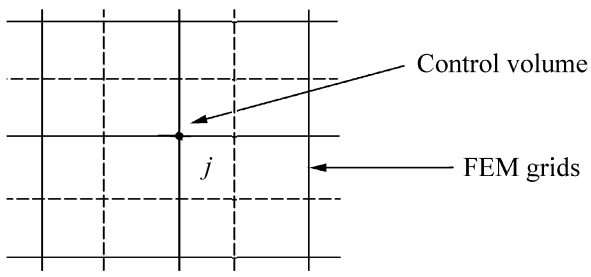

图1　有限元网格与控制体积

Fig. 1　FEM mesh and nodal control volume

$$V_r^j = (1 - f) V^j \qquad (10)$$

式中: V_r^j 为控制体积j 中树脂所占体积; V^j 为控制体积j 的体积。

$$Q^j = \rho H_r V_r^j \frac{d\dot{\alpha}^j}{dt} \qquad (11)$$

式中: Q^j 为控制体积j 的生成热，该项作为节点集中载荷加到节点j 上。则方程(8.3) 成为:

$$\{F\} = \{Q^j\} \qquad (12)$$

至于固化度的求解，可假设在某一小时间间隔内温度是常量，用时间积分的方法来计算固化度:

$$\dot{\alpha}^{t+\Delta t} = \dot{\alpha}^t + \frac{d\dot{\alpha}^{t+\Delta t}}{dt}\Delta t \qquad (13)$$

由于 $\dot{\alpha}^t$ 为上一步计算值是已知的，而 $(d\dot{\alpha}/dt)^{t+\Delta t}$ 也事先由化学动力学模型确定，因此很容易得到 $\dot{\alpha}^{t+\Delta t}$。该求解方案具有简单易行并不受方程表达形式限制的优点而得到广泛使用[3~7]。

热源项与固化度耦合，这两者本质上都是时变的。当时间增量取得足够小时，在该时间增量内可以将热源项近似为常量，利用方程(7) 求解温度场。然后，用方程(13) 得到固化度。并以此修正下一步的热源载荷，重复上述过程直至固化结束。

2　数值算例

2.1　二维算例

该二维算例作为验证算例取自文献[3]。材料体系为玻璃/聚酯，表1 给出了其复合材料的热物理特性参数和化学动力学参数。层板尺寸宽15.24 cm，厚度分别取为1.38 cm、2.54 cm 和5.08 cm。对于厚为2.54 cm 的有限元网格如图2，其化学动力学模型采用方程(4.1)。

表1　二维算例玻璃/聚酯的热物理特性和化学动力学参数

Table 1　Thermal properties and cure kinetic parameters of Glass/Polyester for two-dimensional example

ρ/(kg·m^{-3})	1890
C_{pc}/(J·(W·°C)$^{-1}$)	1260
K_{c33}/(W·(m·°C)$^{-1}$)	0.2163
K_{c11}/K_{c33}	2
m	0.524
n	1.476
k_0/s^{-1}	6.1667×10^{20}
ΔE_c/(J·mol^{-1})	1.674×10^{5}
H_r/(J·kg^{-1})	77500

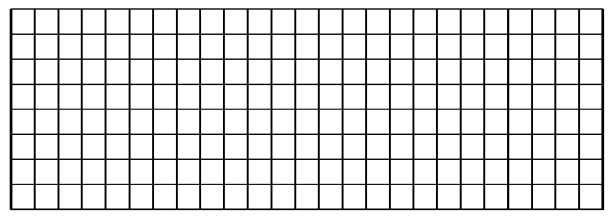

图2　二维算例有限元网格(厚为2.54 cm)

Fig. 2　FEM mesh for two-dimensional example with thickness of 2.54 cm

本算例模拟中采用的边界条件与文献[3] 相同，即上下表面施加模具温度而侧面为绝热条件。图3 给出了二维算例三种厚度情况下的沿厚度中线处的温度与固化度的时间历程，这些结果与文献[3] 的结果基本吻合。图中可以观察到对于薄板(1.38 cm) 容易实现均匀固化，而厚度较大的板(2.54 cm 和5.08 cm) 都出现了复合材料局部温度较高的现象。厚为2.54 cm 板的放热峰出现在第168 min(文献[3] 中的结果为164 min。这是由于本文中采用的固化工艺曲线是从文献[3] 的图11 中直接量取的，而与原文献准确的固化工艺曲线稍有差别的原因)，板中心处的树脂已基本完成固化。而厚为5.08 cm 板在168 min 时中心处树脂还未固化，其放热峰相对于2.54 cm 板有显著延迟，出现在第206 min，而且其复合材料内外温度差也较2.54 cm 板增大。以上分析表明: 对于同一条工艺曲线，厚度增加可以导致放热峰延迟以及内外温差增大。这种板厚度较大导致的复合材料局部温度过高现象将可以使残余应力高度发展，从而影响复合材料制品的力学性能。图4 给出了2.54 cm 厚板温度场二维、三维模拟结果的比较，可以看到

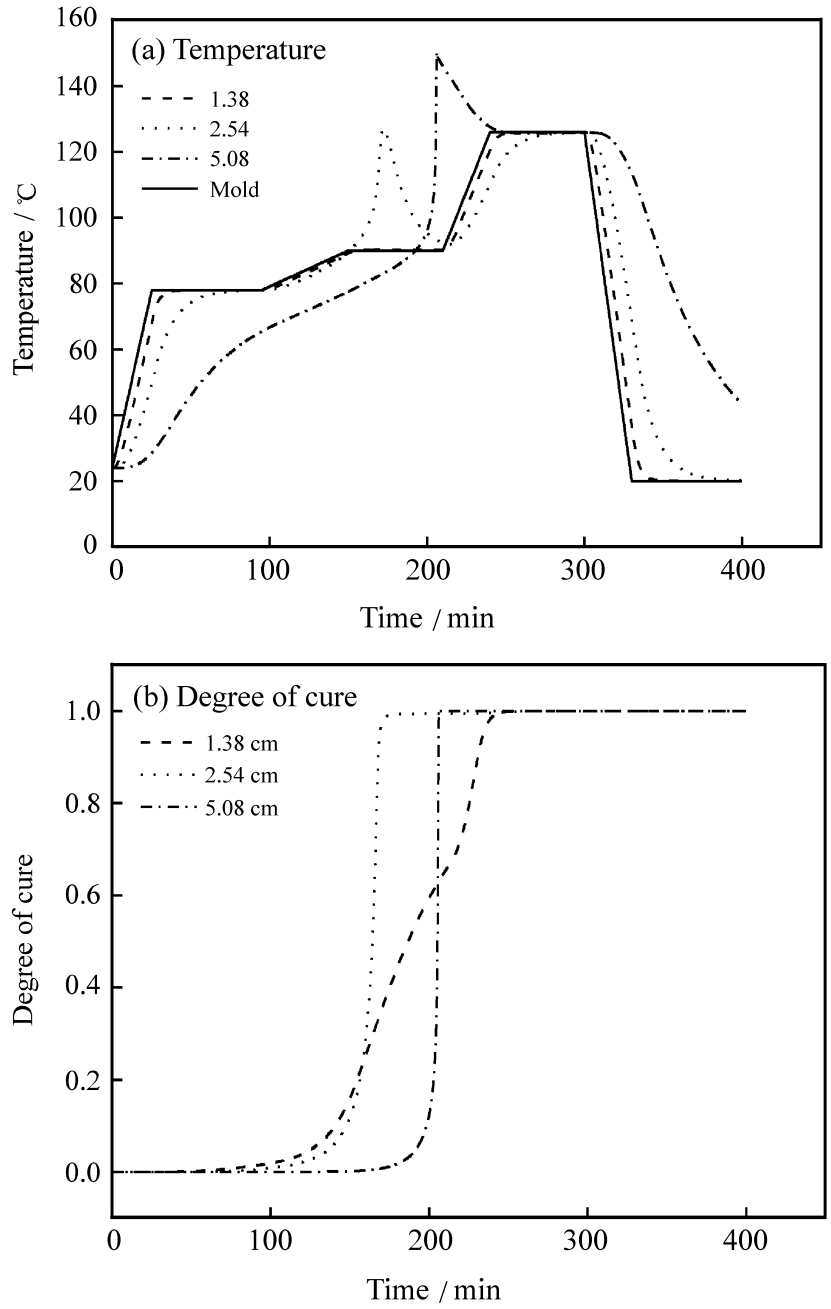

图3　二维算例不同厚度情况下中心线处温度与固化度历程

Fig. 3　Centerline temperature and degree of cure histories for three different thickness cases in two-dimensional example

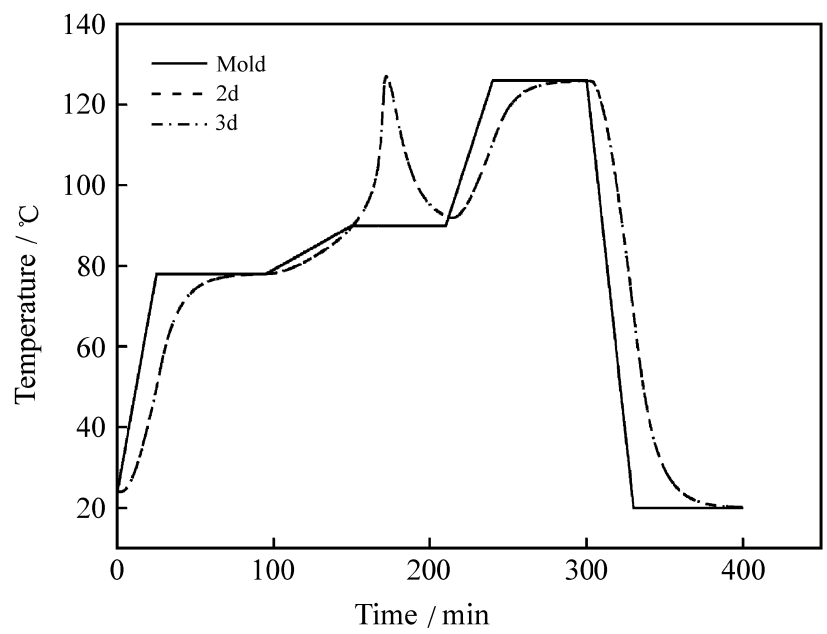

图4　2.54 cm 厚度板中心线处温度场的二维和三维模拟的比较

Fig. 4　Comparison of centerline temperature histories between two and three-dimensional simulations for 2.54 cm thickness cases

本文中三维模拟与二维模拟结果有很好的一致性。本文中模拟得到的放热峰出现时的温度为126.9 ℃，而文献[3]的为126 ℃，这说明了本文中三维固化模拟程序的正确性。

2.2　三维算例

三维算例为一带孔的圆筒形构件，纤维体积分数为40 %。其结构几何与有限元模型见图5，图6给出了1/4 截面处温度和固化度输出的四个选择点。材料体系为碳/环氧，其材料的热物理特性和环氧树脂的化学动力学参数见表2，这里固化动力学模型采用方程(4.2)。

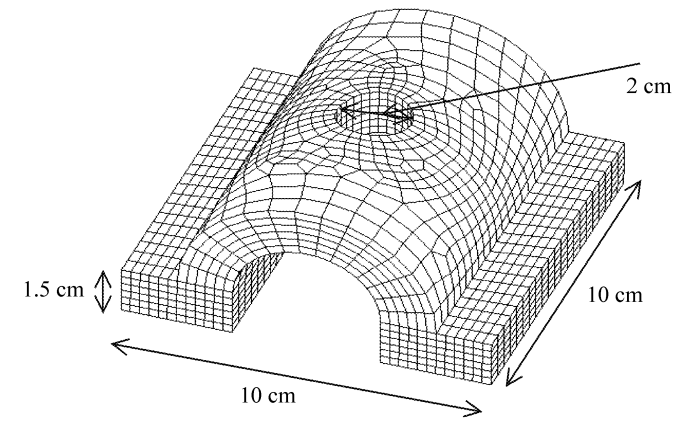

图5　三维算例的几何结构和有限元网格

Fig. 5　Mold geometry and FEM mesh used in three-dimensional example

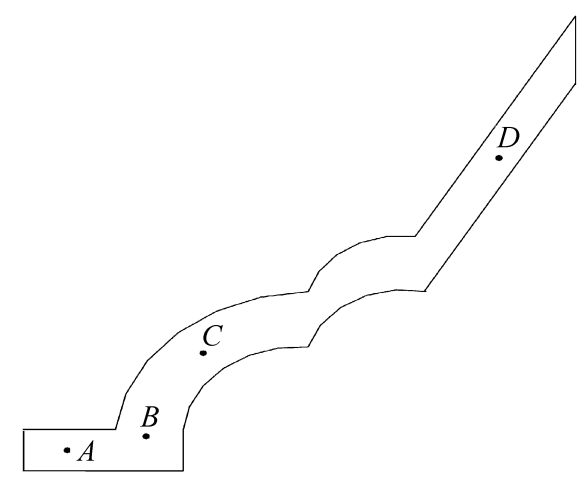

图6　复合材料内部温度和固化度历程输出的四个选择点

Fig. 6　Four selected points within the composite for behaviors of temperatures and cure degrees

表2　三维算例的材料热物理特性及其化学动力学参数

Table 2　Thermal properties and cure kinetic parameters of Carbon/Epoxy for three-dimensional example

ρ (kg · m^{-3})	Carbon fiber	1790
	Epoxy resin	1150
C_p / (J · (W · °C)$^{-1}$)	Carbon fiber	712.35
	Epoxy resin	8210
K_i / (W · (m · °C)$^{-1}$)	Carbon fiber	0.137
	Epoxy resin	8.637
m		0.958
n		0.841
A_1 / s^{-1}		1.759×10^5
A_2 / s^{-1}		3.888×10^5
ΔE_1 / (J · mol^{-1})		6.513×10^4
ΔE_2 / (J · mol^{-1})		5.408×10^4
H_r / (J · kg^{-1})		459224

实际模拟中的复合材料热物理特性参数按照混合律(方程2)来确定。图7给出了四个选择点的温度和固化度历程,图8给出了在36 min和40 min时的复合材料内部的温度分布。本算例的固化工艺曲线参考文献[9]给出。从图8可以观察到由于树脂固化反应释放出的热量不能及时散发出去,而导致复合材料内局部温度过高现象比较严重,厚度中心线与表面温差最大可达46 ℃。而在放热峰过后正处于固化曲线的升温段,此时由于升温速率较快,使得外部供热不能及时传递到复合材料内部,而导致表面温度比内部温度高。在进入第二个保温平台后,大约在87 min,复合材料内外温度才趋于一致。从图8可以观察到复合材料内部温度分布的变化。由于本算例不仅在上下表面有外部供热,在侧面也有外部供热,靠近侧面的中心区域相对于远离侧面的中心区域较早获得热量,而使固化反应较早进行。因此,在36 min时靠近侧面区域温度最高,随着固化反应的进行,内部热量积聚,使得温度最高点向远离侧面的中心区域偏移。

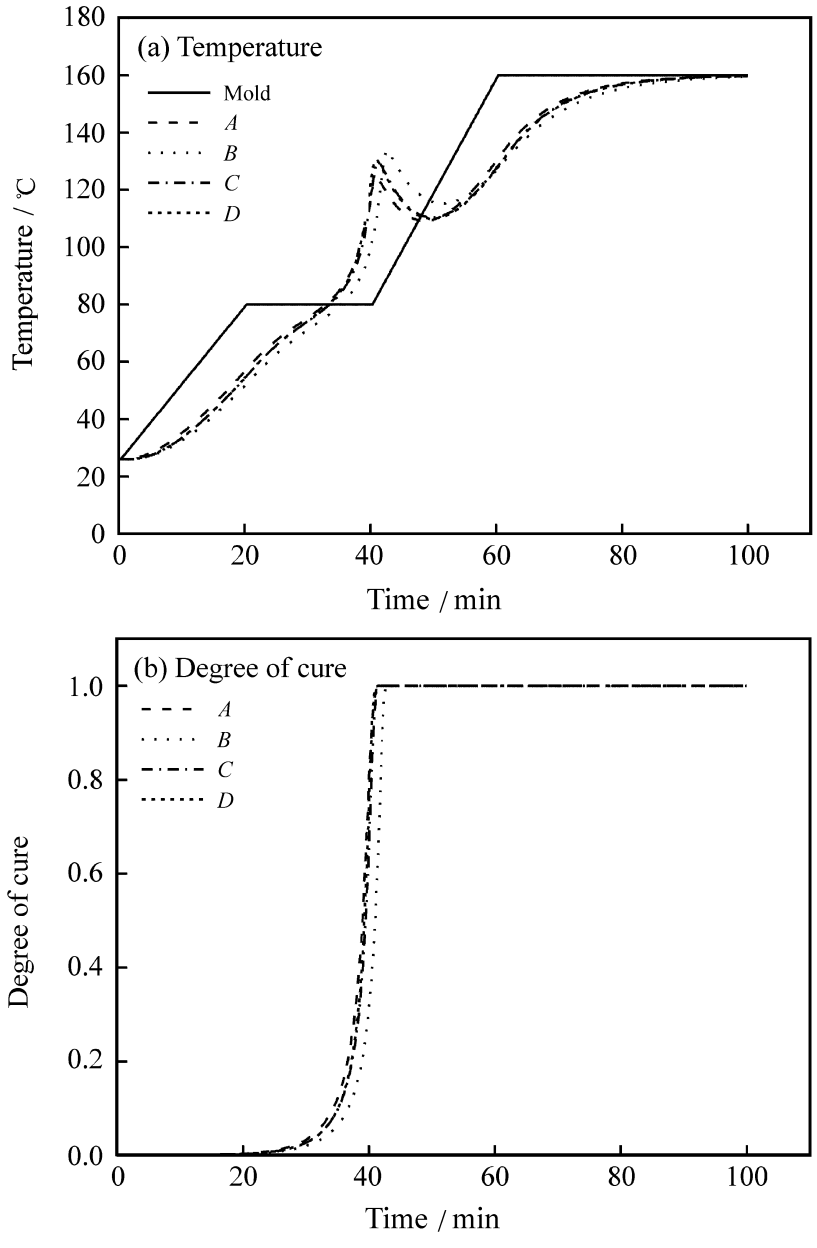

图7　三维算例四个选择点温度和固化度历程

Fig. 7　Temperature and degree of cure histories for four selected points in three-dimensional example

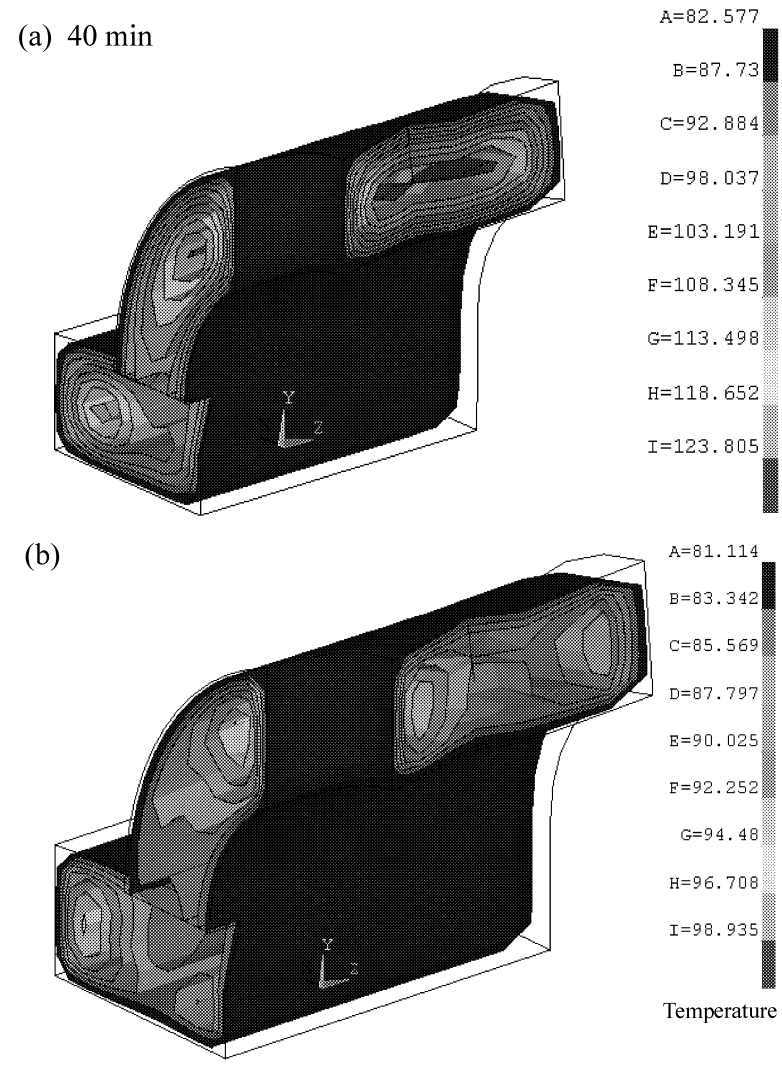

图8　三维算例的温度分布(1/4截面)

Fig. 8　Temperature profiles for three-dimensional example(1/4 section)

本算例研究表明:本文开发的三维模拟程序可以模拟具有复杂形状构件的固化过程,这将为固化工艺设计提供有效的参考依据。

3　结　论

本文中将来自放热化学反应的非线性热源项以控制体积的方法处理成节点集中载荷,以时间积分的方案求解固化度,采用有限元方法求解热传导方程,开发了三维RTM工艺固化过程数值模拟程序。以厚板构件的二维数值模拟与文献中结果比较证明了本文中方法的正确性,并讨论了厚度对温度分布的影响。针对带孔圆筒形构件的算例研究表明了本文中方法在处理涉及复杂形状的问题时也具有良好稳定性与可靠性。

参考文献:

[1]　尹明仁,段跃新,李　丹,等. 视窗化RTM工艺充模过程模拟仿真技术研究[J]. 复合材料学报,2001,18(4): 17-22.

[2]　戴福洪, 杜善义. 复合材料RTM制造工艺数值模拟研究进展[J]. 宇航材料工艺, 2002, 32(184): 14-18.

[3]　ntonucci V, Giordano M, Hsiao K T, et al. A methodology to reduce thermal gradients due to the exothermic reac-

tions in composites processing [J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2002, 45(8): 1675-1684.

[4] 谢怀勤, 陈 辉, 方双全. 聚合物基复合材料模压成型过程固化度与非稳态温度场的数值模拟[J]. 复合材料学报, 2003, 20(5): 73-76.

[5] 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.

[6] ogetti T A, GILLESPIE Jr J W. Two-dimensional cure simulation of thick thermosetting composites [J]. Journal of Composite Materials, 1991, 25(3): 239-273.

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

[8] Suratno B R, Ye Lin, Mai Yiu Wing. Simulation of temperature and curing profiles in pultruded composite rods [J]. Composites Science and Technology, 1998, 58(2): 191-197.

[9] Liu X L, Crouch I G, Lam Y C. Simulation of heat transfer and cure in pultrusion with a general-purpose finite element package [J]. Composites Science and Technology, 2000, 60(6): 857-864.

[10] Joshi S C, Liu X L, Lam Y C. A numerical approach to the modeling of polymer curing in fibre-reinforced composites [J]. Composites Science and Technology, 1999, 59(7): 1003-1013.

[11] Blest D C, Duffy B R, McKee S, et al. Curing simulation of thermoset composites [J]. Composites: Part A, 1999, 30(11): 1289-1309.

[12] 戴福洪, 张博明, 杜善义, 等. 复杂形状三维薄壁构件RTM制造工艺注模过程模拟[J]. 复合材料学报, 2004, 21(2): 87-91.

[13] Choe Mi Ae, Lee Mi Hye, Chang Jaeeon. Three-dimensional simulation of the curing step in the resin transfer molding process [J]. Polymer Composites, 1999, 20(4): 543-552.

(上接第121页)

3. 注意中英文不同的表达方法。不要简单地逐字直译。例如, 不要将because放在句首表达"因为"这一概念, because表示原因语气用在文摘中过强。不要用"XX are analyzed and studied (discussed)"。来直译"分析研究(讨论)"这一中文概念。用"XX are analyzed"就可以了。尽量不要使用not only … but also直译中文"不但"…"而且"这一概念, 用and就行了。

(三). 文摘中的特殊字符

特殊字符主要指各种数学符号、上下脚标及希腊字母, 它们无法直接输入计算机, 因此都需转成键盘上有的字母和符号。Ei 对此有专门规定。希望在文摘中尽量少用特殊字符及由特殊字符组成的数学表达式。因为它们的输入极为麻烦, 而且极易出错, 影响文摘本身的准确性和可读性, 应尽量不用, 改用文字表达或文字叙述. 更复杂的表达式几乎难以输入, 应设法取消。

(四). 缩写字及首字母缩写词(Abbreviations and Acronyms)

对那些已经为大众所熟悉的缩写词, 如radar、laser、CAD等, 可以直接使用。对于那些仅为同行所熟悉的缩略语, 应在题目、文摘或关键词中至少出现一次全称。