复合材料学报 第24卷 第2期 4月 2007年
Acta Materiae Compositae Sinica Vol. 24 No. 2 April 2007

文章编号: 1000-3851(2007)02-0120-05

固化度与固化收缩对非对称复合材料层合板固化变形的影响

张纪奎, 郦正能*, 关志东, 程小全
(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: 采用三维有限元方法研究复合材料非对称层合板在热载荷和固化收缩载荷下的固化变形情况, 建立了材料力学特性、固化体积收缩量和温度与固化度之间的函数关系, 考察了层合板变形曲率与温度和固化度之间的关系。数值计算结果表明: 非对称层合板变形曲率与固化终止时固化度有密切关系; 固化变形主要发生在降温阶段; 固化收缩对层合板变形曲率影响很小, 主要发生在第二个保温平台的前半段。

关键词: 非对称层合板; 变形; 温度; 固化收缩; 有限元分析
中图分类号: TB330.1 **文献标识码**: A

Influence of degree of cure and cure shrinkage on the finial deformation of the unsymmetric composite laminates

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

Abstract: The deformation of the composite unsymmetric laminates subjected to the thermal and chemical volumetric shrinkage load was investigated by the three dimensional finite element methods during the curing process. The material mechanical properties and chemical volumetric shrinkage were expressed as the function of the temperature as well as the degree of cure. The relationship between the laminate curvature and the temperature and degree of cure was studied. The results of the numerical simulation show that the laminates curvature was closely related to the degree of cure at the moment when the cure process terminated; most of the process-induced deformation was generated in the cooling stage; the chemical volumetric shrinkage has slight influence on the laminate deformation and it mainly occurs at the first half of the second temperature dwelling.

Keywords: unsymmetric laminates; deformation; temperature; cure chemical shrinkage; FEA

非对称复合材料结构可以充分发挥复合材料的方向可设计性, 在满足结构强度、刚度的前提下, 达到最佳减重效果。然而, 固化成型过程产生的残余应力和变形使得非对称复合材料结构成型工艺困难而复杂, 增加制造和装配成本; 另一方面由此而产生的结构内应力影响结构的寿命和安全性。研究非对称层合板固化变形变化规律对非对称复合材料结构设计和制造具有重要意义。

Hyer[1] 采用能量法研究非对称层合板的固化变形, 指出层合板的变形行为与板的尺寸有密切关系。Cowley[2] 等将正交铺设带状层合板固化变形近似为柱面形状, 应用经典层合板理论给出了该柱面曲率变形的估算方法。Sarrazin[3] 进行了不同固化温度、铺层顺序、降温速率、模具等情况下非对称层合板回弹试验, 考察了这些因素对回弹量的影响。戴棣[4] 采用修正模量矩阵考虑基体黏弹性效应对层合板残余应力和曲率变化的影响。Gigliotti[5] 等采用间歇固化(Intermittent curing) 法对非对称层合板内残余应力和残余变形的发展过程进行了实验研究, 讨论了固化终止时刻温度与固化变形的关系。然而, 固化过程实际上是树脂交联反应的过程, 固化变形可能与表示交联反应进行程度的固化

收稿日期: 2006-05-09; 收修改稿日期: 2006-06-22
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、复合材料结构设计、耐久性与损伤容限设计研究 E-mail: zjk@ase.buaa.edu.cn

度之间的联系更为紧密，但目前有关固化变形与固化度关系研究的报道甚少。另一方面，目前对非对称层合板固化变形研究主要集中在降温过程，对固化收缩引起的固化变形研究相对较少。

本文中采用三维有限元方法研究非对称层合板在热载荷和固化收缩载荷作用下的固化变形情况。首先计算层合板固化过程温度和固化度历程；然后采用“瞬时线弹性”模型将树脂力学特性表示为温度和固化度的函数，从而建立温度、固化度与非对称层合板固化变形的关系；最后分析和讨论固化收缩和树脂力学性能变化对层合板曲率的影响。

1 有限元方程的建立

复合材料固化成型过程要经历一系列复杂的物理化学变化，影响固化残余应力和变形的因素众多，总的来说可以归为以下4 类：热胀冷缩效应、树脂基体的固化收缩效应、结构与模具之间的相互作用以及温度、固化度和树脂流动的空间不均匀性引起的材料性能差异。Bogetti[6] 等的研究表明，对于薄板而言，温度和固化度以及树脂分布在厚度方向是近似均匀的，材料热胀冷缩效应和树脂固化收缩效应是引起残余应力和变形的主要因素。

对于正交各向异性材料，热载荷与固化收缩载荷变化引起的总自由应变 ε^{TC} 为

$$\varepsilon^{TC} = \begin{matrix} \alpha & \beta & \\ \alpha & \beta & \\ \alpha & \beta & \end{matrix} \begin{matrix} \Delta T \\ \Delta C \end{matrix}$$

式中：ε^{TC} 表示温度和固化度变化引起的应变矩阵；ΔT、ΔC 分别表示温度和固化度变化量；α、α、α 和 β、β、β 分别为材料在3 个主方向上的热膨胀系数和固化收缩系数。

由温度和固化度变化引起的单元载荷列阵可表示为

$$F^{TC} = \int_V B^T D \varepsilon^{TC} dV \qquad (1)$$

式中：F^{TC} 为温度和固化度变化引起的单元载荷列阵；B 为应变矩阵；D 为弹性矩阵；V 为单元体积。

忽略惯性力和黏性力的作用，只考虑热载荷和固化收缩载荷的准静态平衡方程为

$$K\delta = F^{TC}$$

式中：K 为单元刚度矩阵；δ为单元节点位移向量。

2 固化过程材料力学性能变化和固化收缩的数值模型

2.1 固化过程材料力学性能变化

固化过程中，纤维力学性能基本不变，树脂经历液态-橡皮态-弹性状态，力学性能发生显著变化。尽管固化过程中树脂在玻璃化之前呈现明显的黏弹性，但在实际计算中很少采用完全黏弹性模型。首先，试验测定黏弹性模型中各参数非常困难；其次，黏弹性模型的复杂性将使计算量大大增加。另一方面，残余应力和变形主要产生于降温过程，此时树脂已经处于近似线弹性状态，树脂黏弹性引起的应力松弛可以忽略。本文中将树脂看作各向同性体，采用“瞬时线弹性”模型[7] 描述固化过程树脂力学性能变化：

$$\begin{aligned} E_r &= E_r^0 && T^* < T^*_{C1} \\ E_r &= E_r^0 + \frac{T^* - T^*_{C1}}{T^*_{C1} - T^*_{C2}}(E_r^\infty - E_r^0) && T^*_{C1} < T^* < T^*_{C2} \\ E_r &= E_r^\infty && T^* > T^*_{C2} \\ \nu &= \frac{E_r^\infty - E_r(1 - 2\nu^\infty)}{2E_r^\infty} && (2) \end{aligned}$$

其中：$T^* = T_g - T$，$T_g = (T_g^0 + a_{T_g} C)$.

式中：E_r、ν 分别为树脂瞬时弹性模量和泊松比；T_g 为玻璃化转变温度；E_r^0 为树脂固化前($T \ll T_g$)模量；E_r^∞、ν^∞ 分别为树脂完全固化后($T \gg T_g$) 模量和泊松比；T^* 为树脂温度与瞬时玻璃化转变温度之间的差值；T^*_{C1}、T^*_{C2} 为常数，表示玻璃化转变的开始与结束；T、C 表示树脂当前温度和固化度；T_g^0 为固化前玻璃化转变温度；a_{T_g} 为常数，由试验测定。单层板力学性能由 Bogetti 的细观力学模型[8] 确定。图1 为采用式(2) 计算不同温度下8552 树脂弹性模量随固化度的变化关系。

2.2 树脂固化收缩

树脂在固化交联反应过程中会产生一定量的体积收缩，由此产生的收缩应力对层合板参与变形有显著影响。对于固化收缩量较大的树脂体系，其体积收缩可以用下式表示[9]：

$$V_r^S = \begin{cases} 0.0 & C \le C_1 \\ AC_S + (V_r^{S\infty} - A)C_S^2 & C_1 < C \le C_2 \\ V_r^{S\infty} & C > C_2 \end{cases} \qquad (3)$$

其中：$C_S = \dfrac{C - C_1}{C_2 - C_1}$.

式中：V_r^S 为单位体积树脂固化收缩量；$V_r^{S\infty}$ 为树脂

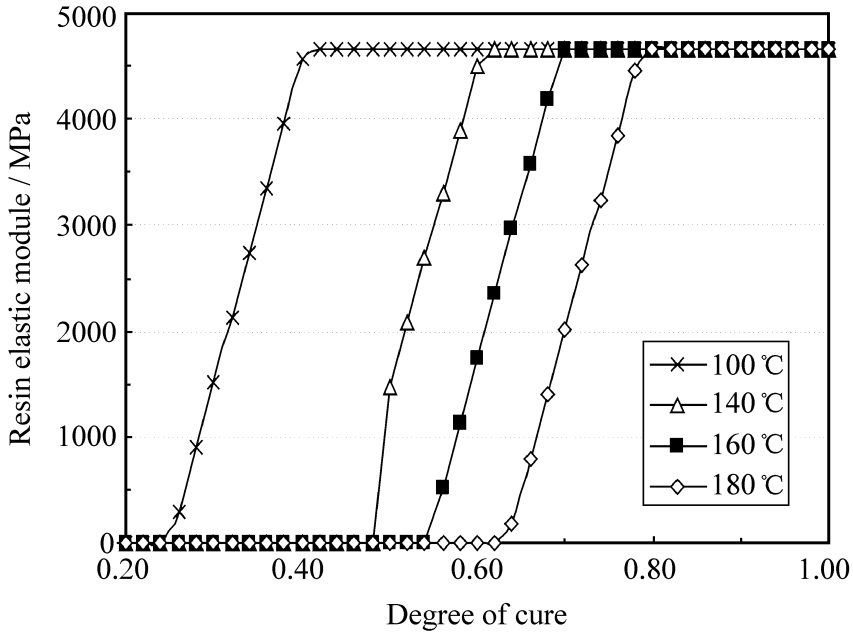

图1　不同温度下树脂弹性模量随固化度变化关系

Fig.1　Resin elastic module vs degree of cure at different temperatures

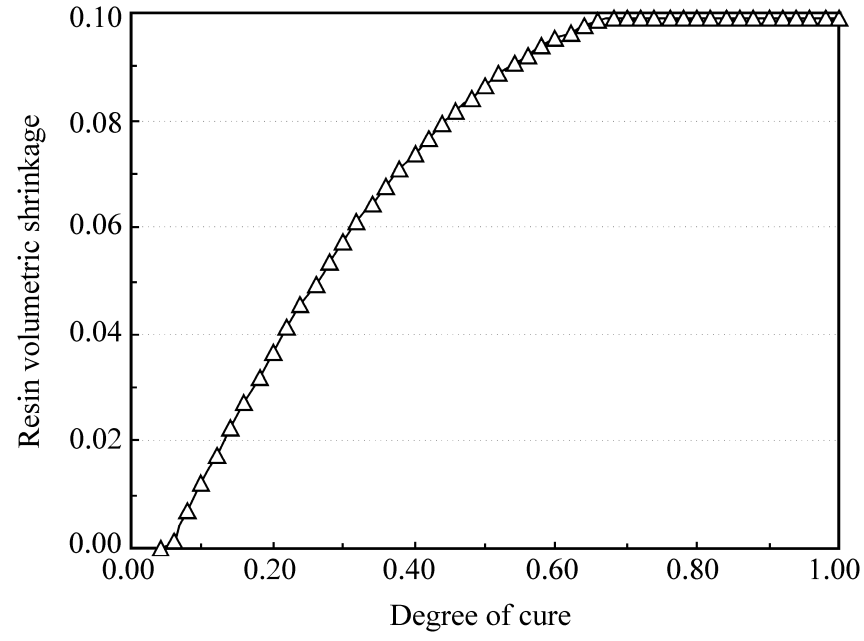

图2　树脂固化收缩量与固化度的关系曲线

Fig.2　Resin chemical volumetric shrinkage as function of degree of cure

完全固化后单位体积树脂固化收缩量; C_1、C_2 分别为固化收缩起始点和终止点; A 为常数, 由试验测定。图2 为采用式(3) 计算8552 树脂单位体积固化收缩量与固化度的关系曲线。

树脂固化收缩应变由下式计算[10]:

$$\varepsilon_1^C = 0$$

$$\varepsilon_2^C = \varepsilon_3^C = \sqrt[3]{1 + V_r^S} - 1 \quad (1 - V_f)(1 + \nu) \tag{4}$$

式中: ε_1^C、ε_2^C、ε_3^C 分别为3 个主方向的化学收缩应变; V_f 为纤维体积含量。由式(1) 及图1、图2 可知, 由于固化不同阶段层合板的力学性能不同, 相同的固化收缩量引起的残余应力和变形并不相同。在固化度较小时, 由于层合板横向模量很低, 固化收缩产生的应力和变形量很小; 只有在凝胶点之后产生的固化收缩才对固化变形有比较明显的影响。

3　算例验证

为了验证算法的可靠性, 本算例采用文献[5]中[0_4/90_4] 铺层的 AS4/8552 层合板, 层合板尺寸如图3 所示: L = 300 mm, W = 30 mm, B = 1 mm, 单层厚度0.125 mm。AS4/8552 材料热学特性及固化动力学参数见文献[10], 力学特性见参考文献[8]。单元划分采用三维8 节点等参数单元, 厚度方向划分为两个单元, 每个单元包含4 层。

3.1　温度和固化度

图4 为采用文献[10] 中程序计算所得上述 AS4/8552 非对称层合板中心点 CP 温度和固化度随时间变化历程。图4 中 A-H 为文献[5] 中间歇

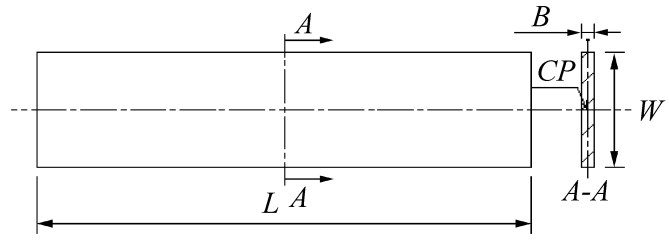

图3　非对称 AS4/8552 层板示意图

Fig.3　Schematic of the unsymmetric AS4/8552 laminates

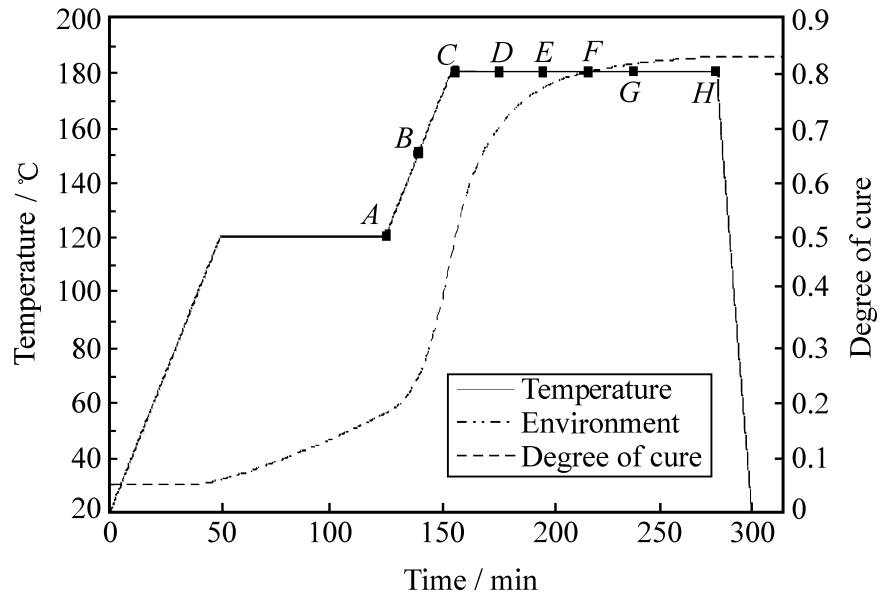

图4　AS4/8552 层板 CP 点温度和固化度历程

Fig.4　Temperature and degree of cure development at point CP of AS4/8552 laminates

固化的固化终止点。由图4 可见: (1) 层合板中心(CP) 点温度与热压罐环境温度几乎一致, 仅在 C 点附近稍稍大于环境温度, 这说明沿厚度方向温度和固化度是近似均匀的, 由此可以假设树脂流动不均匀性对层合板变形的影响可以忽略; (2) 固化度从 B 点到D 点变化最为剧烈; (3) 在给定的热压罐环境温度下, 层合板没有达到完全固化, 固化度最

终稳定在0.83 左右。

3.2 曲 率

试验[5] 和本文数值计算结果表明, [0/90] 铺设层合板固化变形可近似为柱面形状, 可以用该柱面曲率t_κ表示非对称层合板的变形程度。如图5 所示, U_3 为层合板的最大离面位移, L'为变形后柱面形状弦长的一半, R 为柱面半径。柱面曲率t_κ可用下式计算:

$$t_\kappa = \frac{1}{R} = \frac{2U_3}{(L')^2 + (U_3)^2}$$

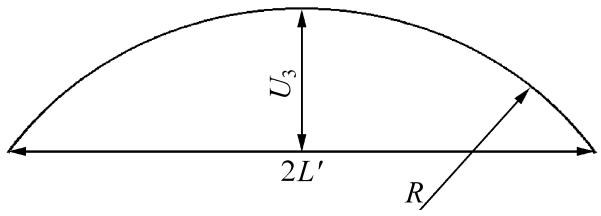

图5 曲率计算示意图

Fig.5 The schematic of the curvature calculation

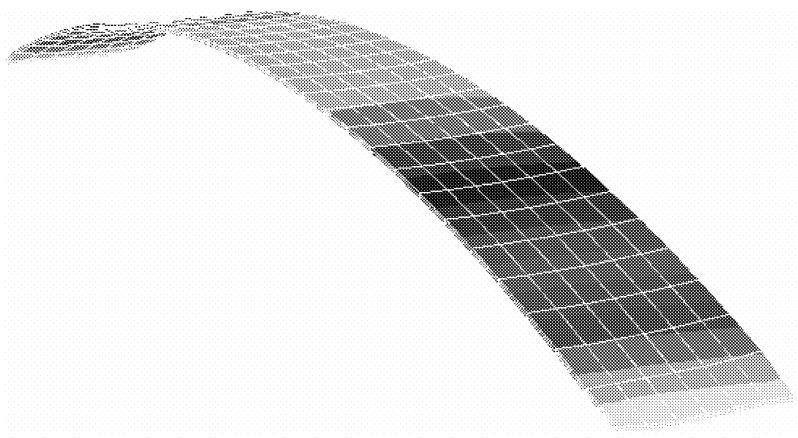

图6 非对称层合板变形图

Fig.6 The deformed shape of the unsymmetric laminates

图6 为本文计算[$0_4/90_4$] 铺层层合板在 H 点停止固化后的变形图。表1 为本文计算上述非对称层合板曲率与文献[5] 所述试验结果的对比情况。由表1 可见, 本文计算结果相对 H 点试验结果大7.37 %, 比 G 点试验结果大1.86 %。这是因为在 G 点固化收缩刚刚结束, 保温时间较短, 应力松弛效应引起的残余应力松弛效应相对较小; 而 H 点由于保温时间较长, 树脂固化收缩引起的残余应力由于应力松弛效应减小比较明显。本文中计算模型没有考虑树脂的黏弹性效应, 故最终曲率计算结果与 G 点更为接近。

4 分析与讨论

4.1 树脂固化收缩的影响

图7 为 H 点停止固化时考虑固化收缩与不考虑固化收缩两种情况非对称层合板的曲率对比。由

表1 非对称层合板的曲率试验与计算值对比

Table 1 The curvature of the laminates

	t_κ / m^{-1}	Error (H)* / %	Error (G)* / %
Experimental result H	4.07	0.00	-5.13
Experimental result G	4.29	5.41	0.00
FEA result	4.37	7.37	1.86

* Error (H) 表示相对于试验结果 H 的误差;

* Error (G) 表示相对于试验结果 G 的误差。

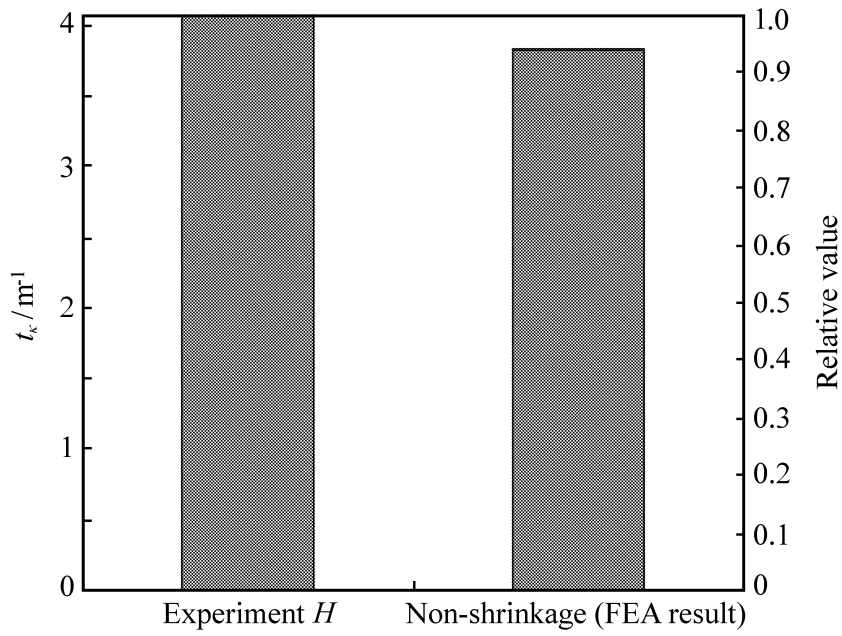

图7 不考虑固化收缩与实验点 H 曲率对比

Fig.7 The curvature of the laminate under experiment H and non-shrinkage (FEA result)

图7 可见, 固化收缩与降温过程中温度下降引起的固化变形方向是一致的。不考虑黏弹性效应时, 固化收缩产生的变形量占该层合板曲率变形量的6.14 %。

4.2 材料力学性能变化与曲率关系

表2 为与文献[5] 对应不同时刻停止固化的 CP 点温度、固化度以及层合板曲率。图8 为不同点停止固化的各点固化度及本文中曲率计算结果与文献[5] 试验结果对比。由表2 及图8 可见: (1) 采用本文数值模拟计算结果与实验结果相当吻合, 只是 H 误差稍大; (2) 层合板曲率与固化终止时固化度有密切关系, 两者变化趋势相同。在 D 点之前, 层合板固化度和曲率均迅速增加, 这是因为随着固化度的增加, 即树脂交联反应的进行, 树脂模量迅速增加(如图2 所示), 由式(1) 可见, 热应变引起的载荷也随之增加, 因此层合板曲率迅速增加。从 D 点到 H 点, 固化度与曲率均缓慢增长, 并且逐渐趋于稳定, 但两者增幅并不相同。虽然固化度从0.701 增加到0.829, 增加15.4 %, 但层合板曲率

仅增加5 %，这是因为树脂模量在固化度小于0.8时便趋于稳定，而固化度在0.83左右才趋于稳定。

表2　不同固化终止时刻温度、固化度及曲率

Table 2　Temperature, degree of cure and curvature of the laminates intermittent curing at different times

	t/min	T/℃	C (FEA)	t_κ/m^{-1} (Experiment)	t_κ/m^{-1} (FEA)
A	125	120	0.184	0.00	0.03
B	140	150	0.267	0.88	1.18
C	155	180	0.513	2.78	2.77
D	175	180	0.701	4.10	4.15
E	195	180	0.771	4.14	4.15
F	215	180	0.800	4.14	4.19
G	235	180	0.814	4.29	4.32
H	275	180	0.829	4.07	4.37

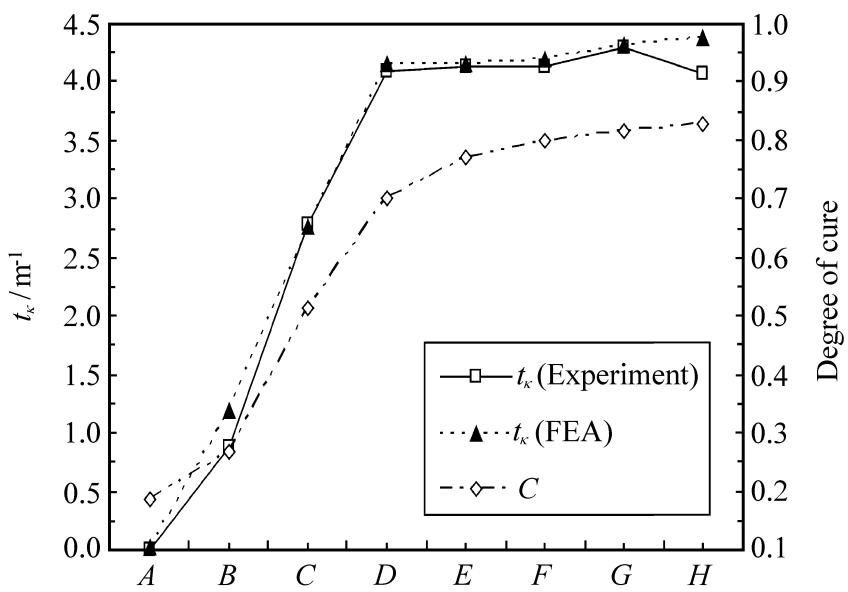

图8　不同固化终止时刻CP点固化度和层合板曲率

Fig.8　Degree of cure of CP and the curvature of laminates at different intermittent curing times

5　结　论

(1) 将固化过程中树脂力学性能变化与体积收缩表示为温度和固化度的函数，采用三维有限元方法数值模拟非对称层合板固化变形，从而建立层合板曲率变形与温度和固化度之间的关系。数值计算结果与文献[5]试验结果对比情况表明了本文算法的有效性。

(2) 不考虑固化收缩的曲率计算结果与实验H点曲率对比表明，树脂固化收缩在非对称层合板最终曲率变形中所占比例为6.14 %，对非对称层合板固化变形影响较小。

(3) 层合板曲率与固化终止时固化度有密切关系，两者变化趋势基本相同。对于本文算例采用的8552树脂，树脂模量增加与体积收缩主要发生在固化度小于0.7之前。在固化度大于0.7之后，层合板曲率变化很小，并且逐渐趋于某一稳定值。

参考文献:

[1] Hyer M W. The room-temperature shapes of four-layer unsymmetric cross-ply laminates [J]. Journal of Composite Materials, 1982, 16(4): 318-340.

[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] Sarrazin H, Kim B, Ahn S H, et al. Effects of processing temperature and layup on springback [J]. Journal of Composite Materials, 1995, 29(10): 1278-1294.

[4] 戴　棣, 乔　新. 粘弹性基体复合材料层合板的固化残余应力和曲率变化[J]. 复合材料学报, 2000, 16(3): 38-41.
Dai Di, Qiao Xin. Variation of cure residual stress and curvature of resin matrix composite laminates [J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2000, 16(3): 38-41.

[5] Gigliotti M, Wisnom M R, Potter K D. Development of curvature during the cure of AS4/8552 [0/90] unsymmetric composite plates [J]. Composite Science and Technology, 2003, 63(2): 187-197.

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

[7] 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.

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

[9] Johnston A. An integrated model of the development of process-induced deformation in autoclave processing of composite structures [D]. Vancouver: The University of British Columbia, 1997: 136-139.

[10] 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.