

基于黏弹性本构模型的热固性树脂基复合材料 固化变形数值仿真模型

闵荣^{*1}, 元振毅², 王永军², 蔡豫晋², 孙博³

(1. 西北工业大学 第 365 研究所, 西安 710072; 2. 西北工业大学 机电学院, 西安 710072;

3. 中航飞机股份有限公司, 西安 710089)

摘要: 针对热固性树脂基复合材料热压罐成型工艺过程, 采用广义 Maxwell(麦克斯韦)黏弹性本构模型建立了残余应力和固化变形的三维模型。模型考虑了复合材料固化过程中的热-化学效应、材料的热胀冷缩效应、基体树脂黏弹性效应以及材料的各向异性。通过与文献中实验结果的比较, 证明了所建立的模型具有较高的可靠性。对复合材料 C 型制件的固化过程进行了数值模拟和实验对比, 对比结果表明该数值模型具有较高的准确性。

关键词: 热固性树脂基复合材料; 黏弹性本构模型; 数值模拟; 残余应力; 固化变形

中图分类号: TB330.1 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-3851(2017)10-2254-09

Numerical simulation for curing deformation of resin matrix thermosetting composite using viscoelastic constitutive model

MIN Rong^{*1}, YUAN Zhenyi², WANG Yongjun², CAI Yujin², SUN Bo³

(1. 365th Institute, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China;

2. Mechanical and Electrical College, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China;

3. AVIC Plane Limited by Share Ltd, Xi'an 710089, China)

Abstract: According to the autoclave forming process of thermoset resin composites, a three-dimensional model which uses the generalized Maxwell viscoelastic constitutive model was established to calculate the residual stress and curing deformation. Thermo-chemical behavior, thermal expansion and contraction behavior, viscoelastic behavior and anisotropy were fully considered in the model. According to the comparison with experiment data in reference, the model established is proved to have relative superior reliability. The curing process of C-shaped composite structure was numerical simulated and compared with experimental data, and the results show high precision of the numerical model in predicting the curing deformation.

Keywords: resin matrix thermosetting composite; viscoelastic constitutive model; numerical simulation; residual stress; curing deformation

热固性树脂基复合材料具有高比强度、比模量、耐腐蚀、抗疲劳等优越的性能, 目前正在航空航天领域得到大量应用。但在复合材料制件成型过程中, 由于材料自身的各向异性、树脂基体的化学收缩反应以及模具作用等因素的影响, 导致制件成型过程中产生残余应力, 引起固化变形, 从而增加

制造成本和装配难度。因此, 合理预测制件固化过程中残余应力的发展, 计算制件的固化变形量, 成为降低制造成本、提高生产效率的重要手段。

早期的研究者认为复合材料制件内部的残余应力主要产生于降温阶段, 然而随着研究的不断深入, 研究人员发现在降温之前复合材料制件内部产

收稿日期: 2016-10-18; 录用日期: 2016-12-21; 网络出版时间: 2017-01-06 13:54

网络出版地址: www.cnki.net/kcms/detail/11.1801.TB.20170106.1354.004.html

通讯作者: 闵荣, 博士, 助理研究员, 研究方向为复合材料成型飞机结构设计 E-mail: minrong82@hotmail.com

引用格式: 闵荣, 元振毅, 王永军, 等. 基于黏弹性本构模型的热固性树脂基复合材料固化变形数值仿真模型[J]. 复合材料学报, 2017, 34(10): 2254-2262.

MIN R, YUAN Z Y, WANG Y J, et al. Numerical simulation for curing deformation of resin matrix thermosetting composite using viscoelastic constitutive model[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2017, 34(10): 2254-2262 (in Chinese).

生的残余应力不可忽略。Fernlund 等^[1]认为厚度方向上的应力梯度是导致制件产生固化变形的主要原因, 并采用三维壳体结构对 L 形和 U 形复合材料制件的固化变形进行了计算。李君等^[2]研究了典型 T 型整体化结构固化过程中的残余应力分布和固化变形情况, 并给出了 T 型结构件几何尺寸对结构翘曲变形的影响。元振毅等^[3-4]针对复合材料固化过程中模具与复合材料制件间相互作用影响对固化残余应力的贡献进行了解析计算和有限元仿真, 并建立了针对平板类制件的固化变形计算模型。Abouhamzeh 等^[5-6]采用经典层合板理论预测了纤维金属夹层板的固化变形, 并认为其模型的计算结果与实验测量结果之间的差异是由于模型中未考虑树脂材料的黏弹性。

目前大多数学者还是采用弹性理论来研究复合材料固化过程中的残余应力和固化变形。实际上树脂属于黏弹性材料, 尤其是在玻璃化转变温度前后, 这种黏弹性性质更加明显。因此, 合理分析树脂的这种黏弹性行为对于准确预测复合材料制件内部的残余应力分布及固化变形行为有重要影响。

White^[7-8]、Prasatya^[9]和 Ding 等^[10-11]采用黏弹性模型对复合材料层合板固化过程中的残余应力进行了数值研究, 模型中考虑了树脂固化放热、固化收缩以及材料的各向异性等因素的影响, 研究结果表明, 树脂化学收缩对残余应力的分布和大小有重要影响。Zobeiry 等^[12-13]进一步提出了伪黏弹性模型(Pseudo-viscoelastic model), 在保证模型计算精度的情况下, 提高了模型的计算效率, 节省了计算时间。李盼^[14]分别采用线弹性模型和黏弹性模型针对 RTM 成型过程中复合材料制件内部的残余应力分布及发展规律进行了比较研究, 结果发现采用黏弹性模型计算得到的固化变形量小于采用线弹性模型的计算结果, 并且树脂含量越高, 复合材料的黏弹性效果越明显。

针对热固性树脂基复合材料固化变形这一问题, 考虑复合材料成型过程中的黏弹性效应, 采用广义 Maxwell 黏弹性本构模型, 利用有限元软件 ABAQUS 的二次开发功能, 建立了复合材料固化变形有限元仿真计算模型。该有限元模型可以用来模拟复合材料制件在整个固化周期内的热传递、残余应力演化以及脱模后固化变形, 并通过实验验证了本文模型的正确性。这对于研究复合材料固化过程成型机制、优化工艺参数具有重要意义。

1 数学模型

1.1 热-化学模型

复合材料制件内部的温度分布决定制件内部的固化程度。复合材料固化过程中的热传导过程需考虑树脂基体的固化反应放热^[15]:

$$\lambda_x \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \lambda_y \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \lambda_z \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + Q = \rho_c C_c \frac{\partial T}{\partial t} \tag{1}$$

式中: ρ_c 为复合材料密度; C_c 为复合材料比热容; λ_x 、 λ_y 和 λ_z 为复合材料 x 、 y 和 z 方向的导热系数; T 为温度; t 为时间; Q 为热生成率, 其表达式为

$$Q = \rho_r (1 - V_f) H_r \frac{d\alpha}{dt} \tag{2}$$

式中: ρ_r 为树脂密度; V_f 为纤维体积分数; H_r 为单位质量树脂固化反应释放的总热量; α 为固化度; $d\alpha/dt$ 为固化反应速率。不同树脂的表达式是不同的, 以环氧树脂 3501-6 为例, 其固化反应速率可以表示为^[16]

$$\frac{d\alpha}{dt} = \begin{cases} (K_1 + K_2 \alpha)(1 - \alpha)(0.47 - \alpha), & \alpha \leq 0.3 \\ K_3(1 - \alpha), & \alpha > 0.3 \end{cases} \tag{3}$$

其中,

$$K_i = A_i \exp \left[\frac{-\Delta E_i}{RT} \right], i = 1, 2, 3 \tag{4}$$

式中: K_i 为自催化模型的反应速率常数; A_i 为自催化模型的频率因子; ΔE_i 为自催化模型的活化能; R 为理想气体常数。

1.2 复合材料黏弹性本构模型

材料的本构方程描述了应力(应变)对变形(外力)的响应。对于具有黏弹性性质的复合材料, 其某刻的应力, 不仅取决于当下的应变, 还与材料此前的整个变形历史有关, 这与弹性材料不再相同。目前常用的两种基本的黏弹性材料本构模型有麦克斯韦模型(Maxwell Model)和开尔文模型(Kelvin Model), 前者是由一个弹簧(弹性模量为 E)和一个黏壶(黏性系数为 η)的串联组合而成, 后者是由一个弹簧和一个粘壶的并联组合而成, 这两种模型均为二元件模型。但是高分子材料的运动单元是多次的, 以单一的松弛时间来描述聚合物的力学松弛过程并不适合, 因此学者们进一步提出更加复杂的黏弹性本构模型, 例如常用的广义麦克斯韦模型, 如图 1 所示。

假设复合材料是由线性黏弹性、热流变简单材料制成, 由 Schapcry 单积分本构关系式, 单层板线

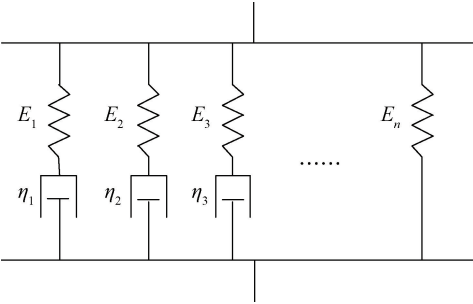


图 1 广义麦克斯韦模型^[17]
Fig. 1 Generalized Maxwell model^[17]

性热黏弹性本构方程可表示为^[18]

$$\sigma_i(t) = \int_{-\infty}^t C_{ij}(T, t - \tau) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \tau} d\tau \tag{5}$$

进一步考虑复合材料固化过程中固化度影响后, 复合材料的线性黏弹性行为可以表示为

$$\sigma_i(t) = \int_{-\infty}^t C_{ij}(a, T, t - \tau) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \tau} d\tau \tag{6}$$

式中: σ_i 为应力分量; C_{ij} 为材料的松弛模量函数, 是反映材料随时间、温度和固化度变化的黏弹性力学参量; τ 为过去时间。 ϵ_j^{eff} 为有效应变矢量, 是与温度和固化度有关的函数。关于有效应变 ϵ_j^{eff} , 可以用下式表示:

$$\epsilon_j^{\text{eff}} = \epsilon_j - \epsilon_{\text{th}} - \epsilon_{\text{ch}} = \epsilon_j - \alpha_j \cdot \Delta T - \alpha_{\text{Cj}} \cdot \Delta a \tag{7}$$

式中: ϵ_j 、 ϵ_{th} 和 ϵ_{ch} 分别为材料总应变、热应变以及化学收缩应变; α_j 和 α_{Cj} 分别为材料的热膨胀系数和化学收缩系数。当固化度 a 达到某一常数 a_c 时, 材料即变为简单的热流变材料。假设在 $t=0$ 时刻之前没有应变发生, 则式(6)可以进一步写成

$$\sigma_i(t) = \int_0^t C_{ij}(a_c, T_c, \xi' - \xi') \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \tau} d\tau \tag{8}$$

式中: a_c 为对应的参考固化度; T_c 为对应的参考温度。对于常见的复合材料 AS4/3501-6 来说, a_c 为 0.98, T_c 为 30℃^[19]。 ξ' 和 ξ' 称为折算时间 (Reduced time), 可以表示为

$$\xi' = \int_0^t \frac{ds}{a_T(a, T)}; \quad \xi' = \int_0^\tau \frac{ds}{a_T(a, T)} \tag{9}$$

式中, a_T 称为转换因子, 对于复合材料 AS4/3501-6 来说, 转换因子 a_T 可以表示为^[19]

$$a_T = 10^{[-a_1 \exp(\frac{1}{a-1}) - a_2][T - T_c]} \tag{10}$$

式中, a_1 和 a_2 为常数, 取值分别为 1.4 和 0.0712。

在广义麦克斯韦模型中, 复合材料的弹性模量可以用 Prony 级数式来表示, 如下式所示:

$$E(a, \xi) = E^\infty + (E^u - E^\infty) \sum_{m=1}^{n-1} W_m \exp\left[-\frac{\xi}{\tau_m(a)}\right] \tag{11}$$

式中: W_m 为广义麦克斯韦模型中第 m 个的权重因子; $\tau_m(a)$ 为广义麦克斯韦模型第 m 个的松弛时间; E^∞ 为材料完全松弛时的模量; E^u 为材料没有松弛时的模量。一般认为模量 E^∞ 和 E^u 与温度和固化度无关, 并且二者存在以下关系:

$$E^\infty = rE^u \tag{12}$$

式中, r 为拟合系数。当 r 值取 0 时, 表示材料经过足够长的时间已经完全松弛; 当 r 值取 1 时, 表示材料并无松弛。本文中, r 值取 0.14^[7]。

3501-6 树脂体系的松弛时间可以由下式进行计算^[19]:

$$\tau_m(a) = 10^{(\log[\tau_m(a_r)] + f(a) - (a - a_r) \log(\lambda_m))} \tag{13}$$

其中,

$$f(a) = 9.1347a^2 + 0.6089a - 9.3694 \tag{14}$$

$$\lambda_m = \frac{10^{0.6}}{\tau_m(a_r)} \tag{15}$$

式中, $\tau_m(a_r)$ 为参考固化度下的松弛时间。3501-6 树脂体系在参考固化度下的松弛时间及权重因子如表 1 所示。

表 1 3501-6 环氧树脂在参考固化度下的松弛时间及权重因子^[19]

Table 1 Relaxation times and weighting factors at the reference degree of cure of 3501 epoxy resin ^[19]		
m	τ_m /min	W_m
1	2.922×10^1	0.059
2	2.921×10^3	0.066
3	1.824×10^5	0.083
4	1.103×10^7	0.112
5	2.831×10^8	0.154
6	7.943×10^9	0.262
7	1.953×10^{11}	0.184
8	3.315×10^{12}	0.049
9	4.917×10^{14}	0.025

Notes: τ_m —Discrete stress relaxation time for the m^{th} Maxwell element; W_m —Weight factor for the m^{th} Maxwell element.

1.3 黏弹性本构模型积分型求解方法

目前针对复合材料黏弹性本构模型的求解主要有积分型和微分型两种方法, 两种方法的最终求解结果基本是一致的。在此主要针对积分型求解方法进行简要介绍。将总折算时间划分为许多小区间, 假设 $\xi^{t+\Delta t} = \xi' + \Delta \xi^{t+\Delta t}$, 且在折算时间为 ξ' 时的应力 σ_i' 已知, 则在折算时间为 $\xi^{t+\Delta t}$ 时的应力可表

示为^[20]

$$\sigma_i^{t+\Delta t} = \sigma_i^t + \Delta\sigma_i^{t+\Delta t} \quad (16)$$

$$\sigma_i^{t+\Delta t} = \int_0^{\xi^{t+\Delta t}} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right) \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' \quad (17)$$

其中,

$$\begin{aligned} \exp \left(-\frac{\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right) &= \exp \left(-\frac{\xi^t + \Delta\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right) \\ &= \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \exp \left(-\frac{\Delta\xi^{t+\Delta t}}{\tau_m} \right) \end{aligned} \quad (18)$$

根据式(16)~(18), 则 $t+\Delta t$ 时刻的应力增量可以表示为

$$\begin{aligned} \Delta\sigma_i^{t+\Delta t} &= \sigma_i^{t+\Delta t} - \sigma_i^t = \\ &= \int_0^{\xi^{t+\Delta t}} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right) \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' - \\ &= \int_0^{\xi^t} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' + \\ &= \int_0^{\xi^t} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right) \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' + \\ &= \int_0^{\xi^{t+\Delta t}} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right) \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' - \\ &= \int_0^{\xi^t} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' \quad (19) \end{aligned}$$

进一步整理可得

$$\begin{aligned} \Delta\sigma_i^{t+\Delta t} &= \sigma_i^{t+\Delta t} - \sigma_i^t = \\ &= \underbrace{\int_0^{\xi^t} \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \left[\exp \left(-\frac{\Delta\xi^t}{\tau_m} \right) - 1 \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi'}_{H_1} + \\ &= \underbrace{\int_0^{\xi^{t+\Delta t}} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right) \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi'}_{H_2} \quad (20) \end{aligned}$$

其中:

$$\begin{aligned} H_1 &= \\ &= \int_0^{\xi^t} \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \left[\exp \left(-\frac{\Delta\xi^t}{\tau_m} \right) - 1 \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' \quad (21) \end{aligned}$$

$$H_2 =$$

$$\int_{\xi^t}^{\xi^{t+\Delta t}} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right) \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' \quad (22)$$

假设在每个很小的时间间隔内应变呈线性变化, 则式(21)和式(22)中的偏导 $\partial \epsilon_j^{\text{eff}} / \partial \xi'$ 可进一步简化为

$$\frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} \approx \frac{\Delta \epsilon_j^{\text{eff}}}{\Delta \xi} \quad (\xi^{t-\Delta t} \leq \xi' \leq \xi^t) \quad (23)$$

假设在极短的时间间隔 Δt 内温度和固化度变化量忽略不计, 则转化因子 a_T 为恒值, 故:

$$\Delta \xi^{t+\Delta t} = \int_t^{t+\Delta t} \frac{d\tau}{a_T} = \frac{\Delta t^{t+\Delta t}}{a_T} \quad (24)$$

则有

$$\begin{aligned} H_1 &= \\ &= \int_0^{\xi^t} \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \left[\exp \left(-\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right) - 1 \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' = \\ &= \sum_m \left[\exp \left(-\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right) - 1 \right] \underbrace{\int_0^{\xi^t} \bar{C}_{ij} W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi'}_{S_i(t)} \quad (25) \end{aligned}$$

式中,

$$\begin{aligned} S_i(t) &= \int_0^{\xi^t} \bar{C}_{ij} W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' \\ &= \underbrace{\int_0^{\xi^{t-\Delta t}} \bar{C}_{ij} W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi'}_{H_3} + \\ &= \underbrace{\int_{\xi^{t-\Delta t}}^{\xi^t} \bar{C}_{ij} W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi'}_{H_4} \quad (26) \end{aligned}$$

其中:

$$\begin{aligned} H_3 &= \int_0^{\xi^{t-\Delta t}} \bar{C}_{ij} W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' \\ &= \int_0^{\xi^{t-\Delta t}} \bar{C}_{ij} W_m \exp \left(-\frac{\xi^{t-\Delta t} + \Delta \xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' = \\ &= \int_0^{\xi^{t-\Delta t}} \bar{C}_{ij} W_m \exp \left(-\frac{\xi^{t-\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right) \exp \left(-\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' \\ &= \exp \left(-\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right) S_i(t - \Delta t) \quad (27) \end{aligned}$$

$$H_4 = \int_{\xi^{t-\Delta t}}^{\xi^t} \bar{C}_{ij} W_m \exp \left(-\frac{\xi^t - \xi'}{\tau_m} \right) \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi'$$

$$\begin{aligned}
&= \bar{C}_{ij} W_m \left[1 - \exp \left\{ -\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right\} \right] \tau_m \frac{\Delta \epsilon_j^{\text{eff}, t}}{\Delta \xi^t} \\
&= \bar{C}_{ij} W_m \frac{\tau_m a_T \Delta \epsilon_j^{\text{eff}, t}}{\Delta t} \left[1 - \exp \left\{ -\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right\} \right] \quad (28)
\end{aligned}$$

将式(27)和式(28)代入式(25), 经整理可得

$$\begin{aligned}
H_1 = & \int_{\xi^t}^{\xi^{t+\Delta t}} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left\{ -\frac{\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right\} \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' = \\
& \underbrace{\left\{ C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \frac{a_T \tau_m}{\Delta t} \left[1 - \exp \left\{ -\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right\} \right] \right\}}_{C_{ij}^*} \Delta \epsilon_j^{\text{eff}, t+\Delta t} \quad (29)
\end{aligned}$$

同理, 经整理可得

$$\begin{aligned}
H_2 = & \int_{\xi^t}^{\xi^{t+\Delta t}} \left[C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \exp \left\{ -\frac{\xi^{t+\Delta t} - \xi'}{\tau_m} \right\} \right] \frac{\partial \epsilon_j^{\text{eff}}}{\partial \xi'} d\xi' = \\
& \underbrace{\left\{ C_{ij}^\infty + \bar{C}_{ij} \sum_m W_m \frac{a_T \tau_m}{\Delta t} \left[1 - \exp \left\{ -\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right\} \right] \right\}}_{C_{ij}^*} \Delta \epsilon_j^{\text{eff}, t+\Delta t} \quad (30)
\end{aligned}$$

将式(25)和式(30)代入式(20), 则有

$$\Delta \sigma_i^{t+\Delta t} = C_{ij}^* \Delta \epsilon_j^{t+\Delta t} + \sum_m \left[\exp \left\{ -\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right\} - 1 \right] S_i(t) \quad (31)$$

其中,

$$\begin{aligned}
S_i(t) = & \left[\exp \left\{ -\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right\} \right] S_i(t - \Delta t) + \\
& \bar{C}_{ij} W_m \frac{\tau_m a_T \Delta \epsilon_j^{\text{eff}, t}}{\Delta t} \left[1 - \exp \left\{ -\frac{\Delta \xi^t}{\tau_m} \right\} \right] \quad (32)
\end{aligned}$$

复合材料为正交各向异性材料, 其刚度系数矩阵 C 只需要 9 个独立的刚度系数即可表示, 如下式所示:

$$\begin{Bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & C_{22} & C_{23} & 0 & 0 & 0 \\ & & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & C_{44} & 0 & 0 \\ & \text{Sym.} & & & C_{55} & 0 \\ & & & & & C_{66} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \epsilon_1 \\ \epsilon_2 \\ \epsilon_3 \\ \epsilon_4 \\ \epsilon_5 \\ \epsilon_6 \end{Bmatrix} \quad (33)$$

其中,

$$\begin{aligned}
C_{11} &= \frac{1 - \nu_{23} \nu_{32}}{E_2 E_3 S} \\
C_{12} &= \frac{\nu_{21} + \nu_{23} \nu_{31}}{E_2 E_3 S} \\
C_{13} &= \frac{\nu_{31} + \nu_{21} \nu_{32}}{E_2 E_3 S} \\
C_{22} &= \frac{1 - \nu_{13} \nu_{31}}{E_1 E_3 S} \\
C_{23} &= \frac{\nu_{32} + \nu_{12} \nu_{31}}{E_1 E_3 S} \\
C_{33} &= \frac{1 - \nu_{12} \nu_{21}}{E_1 E_2 S} \\
C_{44} &= G_{23} \\
C_{55} &= G_{31} \\
C_{66} &= G_{12} \\
S &= \frac{1 - \nu_{12} \nu_{21} - \nu_{23} \nu_{32} - \nu_{13} \nu_{31} - 2\nu_{21} \nu_{32} \nu_{13}}{E_1 E_2 E_3} \quad (34)
\end{aligned}$$

1.4 固化变形模拟过程

利用有限元软件 ABAQUS 的二次开发功能建立复合材料固化变形仿真模型。考虑到 ABAQUS 中壳(Shell)单元并不能合理准确地模拟复合材料表面的传热条件, 因此采用三维实体(Solid)单元进行建模。在该残余应力模型中, 需要解决以下两个问题: (1)树脂在固化过程中会产生化学反应放热, 导致温度升高, 并且放热量与树脂的固化程度有关, 如式(2)和式(3)所示; (2)ABAQUS 软件自身的材料库中并没有提供复合材料黏弹性本构模型。

基于上述存在的问题, 需要利用软件的二次开发功能。计算温度场时需要采用 ABAQUS 提供的 HETVAL、USDFLD 以及 DISP 用户子程序; 计算制件内部残余应力需要使用 UMAT、USDFLD 以及 UEXPAN 子程序。用户子程序 UMAT(User subroutine to define a material's mechanical behavior)提供给用户实现对材料本构方程的自定义。通过 Fortran 语言编写子程序 UMAT, 一是为 ABAQUS 主程序每一增量步提供应力增量的更新; 二是为程序提供准确的 Jacobian 矩阵, 即应力增量张量对应变增量张量的变化率。UEXPAN 子程序用来定义复合材料的热膨胀系数及树脂的化学反应收缩应变。

模型计算时, 首先通过热-化学模型模拟复合材料制件的传热过程, 计算单元每一节点在固化过

程中的温度和固化度值; 其次, 将计算得到的温度值和固化度值作为已知条件, 利用黏弹性模型计算复合材料制件内部的残余应力及后续的固化变形。整个仿真计算过程如图 2 所示。

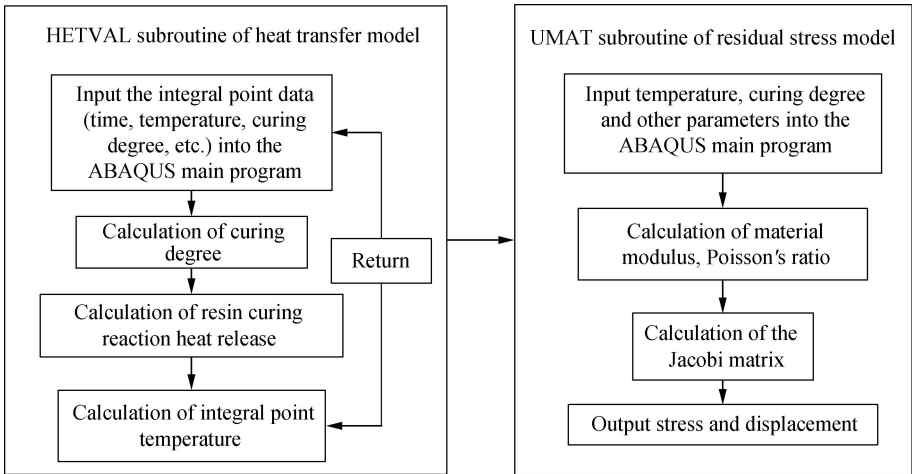


图 2 固化变形数值模拟流程图
Fig. 2 Numerical simulation procedure of curing deformation

2 数值算例

为了验证上节提出的仿真模型的准确性, 在此采用文献[7, 21]中的计算结果进行验证。Kim 和 White 等^[7, 21]针对复合材料 AS4/3501-6 层合板固化过程温度和残余应力进行了计算, 模型几何尺寸为 10.16 cm×10.16 cm×2.54 cm, 考虑到模型及其边界条件的对称性, 在此只取模型的四分之一进行建模, 网格总数量为 4600, 层合板铺层为[0/90]_s, 如图 3 所示。材料 AS4/3501-6 的固化动力学参数及力学性能参数见表 2 和表 3 所示。选取图 3 中的点(0, 5.08, 0)作为计算比对点。计算比对结果分别如图 4(a)和图 4(b)所示, 可以看到本文提出的仿真模型的模拟结果与文献[7, 21]中的计算结果基本一致, 这也验证了本文所建立的有限元模型的准确性。

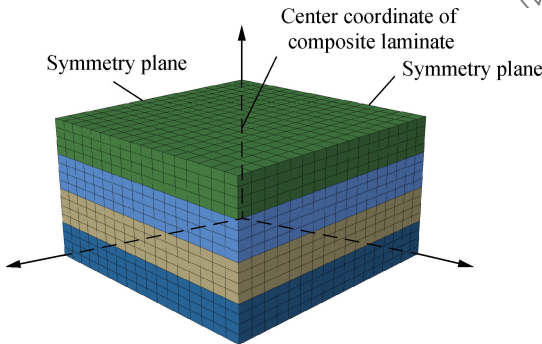


图 3 AS4/3501-6 层合板有限元模型网格及边界条件
Fig. 3 Mesh and boundary conditions of AS4/3501-6 laminate

表 2 AS4/3501-6 预浸料固化动力学参数^[15-16]
Table 2 Cure kinetic constants of AS4/3501-6 prepreg^[15-16]

Parameters	Value
$\rho_c / (\text{kg} \cdot \text{m}^{-3})$	1 578
$C_c / (\text{J}(\text{kg} \cdot \text{K})^{-1})$	862
$\lambda_{11} / (\text{W}(\text{m} \cdot \text{K})^{-1})$	5.43
$\lambda_{22} = \lambda_{33} / (\text{W}(\text{m} \cdot \text{K})^{-1})$	0.4135
A_1 / min^{-1}	2.101×10^8
A_2 / min^{-1}	-2.014×10^9
A_3 / min^{-1}	1.96×10^5
$\Delta E_1 / (\text{J} \cdot \text{mol}^{-1})$	8.92×10^4
$\Delta E_2 / (\text{J} \cdot \text{mol}^{-1})$	7.78×10^4
$\Delta E_3 / (\text{J} \cdot \text{mol}^{-1})$	5.66×10^4
$H_f / (\text{J} \cdot \text{kg}^{-1})$	473 600
$R / (\text{J}(\text{mol} \cdot \text{K})^{-1})$	8.3143

Notes: ρ_c — Density of composite; C_c — Specific heat of composite; λ_{11} and λ_{22} — Heat conduction coefficient of prepreg along x direction and y direction; A_1, A_2, A_3 — Frequency factors of autocatalysis model; $\Delta E_1, \Delta E_2, \Delta E_3$ — Activation energy of autocatalysis model; H_f — Total heat of the curing of unit mass; R — Perfect gas constant.

表 3 AS4/3501-6 预浸料未松弛时的材料参数^[7, 21]

Table 3 Unrelaxed material properties of AS4/3501-6 prepreg^[7, 21]

Parameters	Value
E_1 / GPa	126
$E_2 = E_3 / \text{GPa}$	8.3
$G_{12} = G_{13} / \text{GPa}$	4.1
G_{23} / GPa	2.8
$\alpha_1 / ^\circ\text{C}^{-1}$	0.5×10^{-6}
$\alpha_2 = \alpha_3 / ^\circ\text{C}^{-1}$	35.3×10^{-6}
$\alpha_{C1} / ^\circ\text{C}^{-1}$	-167×10^{-6}
$\alpha_{C2} = \alpha_{C3} / ^\circ\text{C}^{-1}$	-8810×10^{-6}

Notes: E_1, E_2, E_3 — Elastic modulus; G_{12}, G_{13}, G_{23} — Shear modulus; $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ — Thermal expansion coefficient; $\alpha_{C1}, \alpha_{C2}, \alpha_{C3}$ — Chemical shrinkage coefficient.

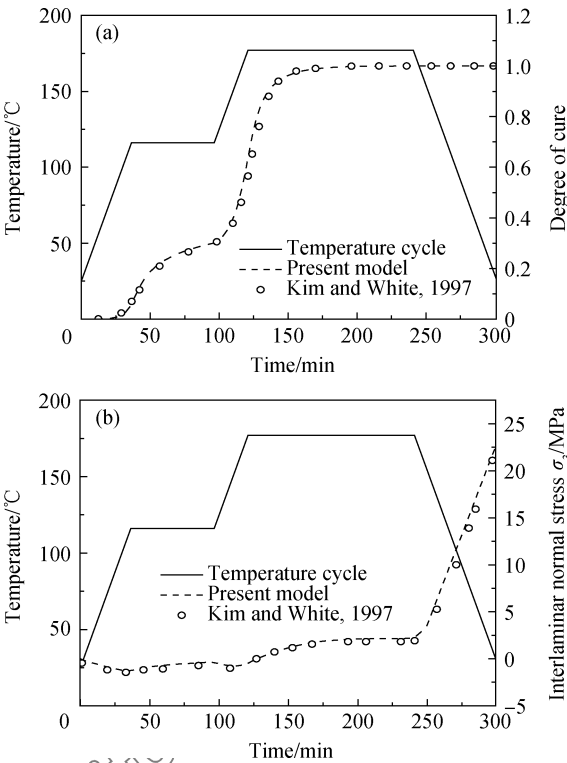


图 4 AS4/3501-6 层合板固化度和残余应力计算结果比较
Fig. 4 Calculated degree of cure and interlaminar normal stress results of AS4/3501-6 laminates during cure

3 T800/M21 C 型复合材料制件固化变形计算

进一步设计实验并使用热压罐成型方法制备了不同铺层顺序的 C 型复合材料制件。制件的结构尺寸如图 5(a) 所示，圆角角度为 90°。实验中采用的预浸料材料牌号为 T800/M21，单层厚度 0.125 mm，材料力学参数见表 4 所示。关于该材料的固化动力学参数，只能假设同 AS4/3501 相同。固化工艺参数如下：初始温度为 25℃，以 2℃/min 升温到 180℃，保温 2 小时，然后以 2℃/min 降温到 25℃，固化压力为 0.6 MPa，成型所用模具材料为钢，成型模具及成型制件分别如图 5(b) 和图 5(c) 所示。

由于 C 型零件的缘条部分比较短，成型后零件的回弹量并不是很大，为了保证实验测量结果的准确性，在此采用手持式激光扫描仪 HandySCAN 300(扫描精度可以达到 0.04 mm)对成型后的 C 型制件的回弹变形量进行扫描。将扫描后的数据导入到软件 Geomagic Qualify 中进行后续处理，通过与成型模具的理论外形面进行比对，可以得到制件的实际回弹量，测量比对结果见表 5 所示。然后采用本文提出的黏弹性仿真模型进行固化变形计算，由于 C 型制件的缘条部分很短，并没有观察到缘条部

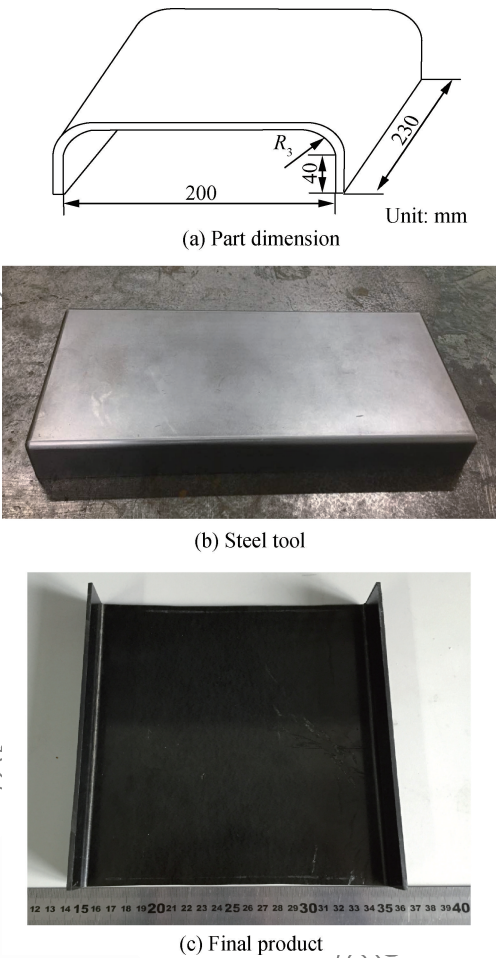


图 5 T800/M21 复合材料 C 型制件
Fig. 5 C-shaped T800/M21 composite part

表 4 T800/M21 预浸料未松弛时的材料参数^[22]

Table 4. Unrelaxed material properties of T800/M21 prepreg^[22]

Parameters	Value
E_1 /GPa	157
$E_2 = E_3$ /GPa	8.5
$G_{12} = G_{13}$ /GPa	4.5
$\nu_{12} = \nu_{13}$ /GPa	0.35
$\alpha_1/^\circ\text{C}^{-1}$	-0.09×10^{-6}
$\alpha_2 = \alpha_3/^\circ\text{C}^{-1}$	30×10^{-6}
$\alpha_{C1}/^\circ\text{C}^{-1}$	0×10^{-6}
$\alpha_{C2} = \alpha_{C3}/^\circ\text{C}^{-1}$	-10000×10^{-6}

Notes: E_1 , E_2 , E_3 — Elastic modulus; G_{12} , G_{13} , G_{23} — Shear modulus; α_1 , α_2 , α_3 — Thermal expansion coefficient; α_{C1} , α_{C2} , α_{C3} — Chemical shrinkage coefficient.

分出现翘曲变形，因此不考虑模具-制件相互作用对该 C 型制件固化变形的影响。模拟边界条件及计算结果见图 6 所示。由于并不确定 T800/M21 材料的化学收缩系数，采用模拟试错的方法进行该参数的确定。关于化学收缩系数对固化变形的影响

见图 7 所示。可以看到, 随着化学收缩系数的增大, 制件的固化变形量也随之增大, 当厚度方向化学收缩系数取 0.01 时, 模拟结果与实验结果吻合性最好。该数值比 AS4/3501 的化学收缩系数(8.810×10^{-3})略大。采用该数值之后的模拟结果如表 5 所示。可以看到, 采用本文的黏弹性模型可以很好地计算 C 型制件的回弹变形。进一步将降温速率由 $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 缩小为 $1^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 。图 8 为不同降温速率下 $[0/90]_{4\text{s}}$ 铺层 T800/M21 制件固化变形模拟结果。可以看出, C 型制件的回弹角度由 1.37° 变为 1.224° 。因此, 可以通过降低降温速率的方法减小制件回弹。

表 5 T800/M21 复合材料 C 型制件回弹角数值模拟
计算结果与实验结果比较

Table 5 Numerical simulation spring-in angle comparison
with experimental results of C-shaped T800/M21 composite part

Lay-up	Experimental spring-in angle/($^{\circ}$)	Numerical spring-in angle/($^{\circ}$)	Error/%
$[0/90]_{4\text{s}}$	1.34	1.37	2.1
$[0/45/-45/90]_{4\text{s}}$	1.36	1.36	0
$[45/-45]_{\text{s}}$	1.48	1.37	-7.5

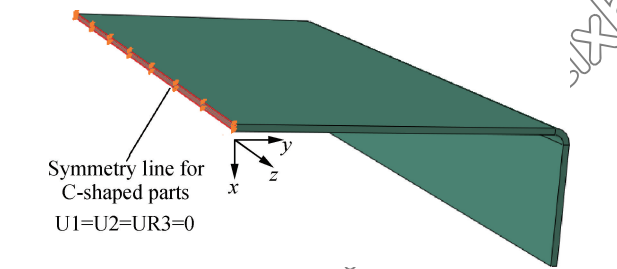


图 6 T800/M21 复合材料 C 型制件模拟位移边界条件定义
Fig. 6 Define of the displacement boundary conditions of C-shaped T800/M21 composite part simulation

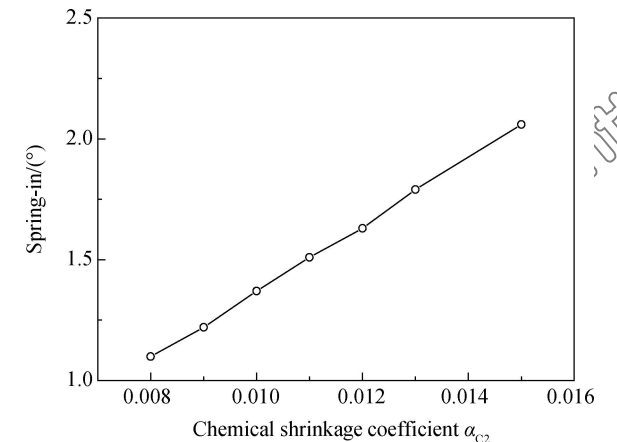


图 7 T800/M21 C 型制件回弹角度与厚度方向化学收缩系数之间的关系
Fig. 7 Relationship between the spring-in angle and α_{c2} of T800/M21 C-shaped part

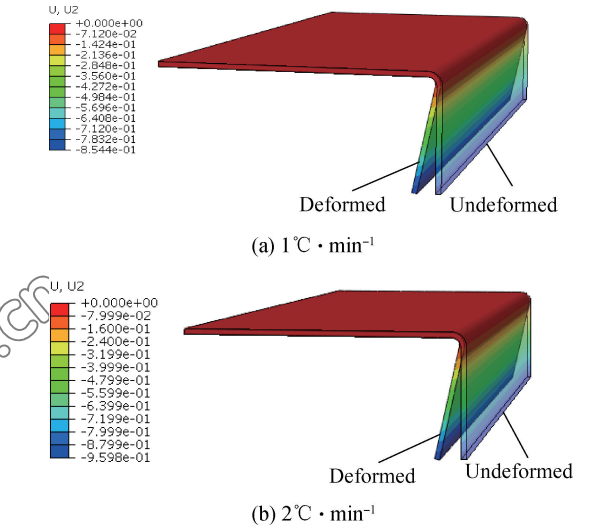


图 8 不同降温速率下 $[0/90]_{4\text{s}}$ 铺层 T800/M21 制件
固化变形模拟结果

Fig. 8 Curing deformation results obtained by numerical simulation of $[0/90]_{4\text{s}}$ C-shaped T800/M21 part under different cooling rates

4 结论

(1) 针对复合材料固化变形问题, 采用广义 Maxwell 黏弹性本构模型表征复合材料的力学特性, 建立了树脂基复合材料固化残余应力三维有限元模型, 通过与文献中的实验数据对比, 验证了所提出的模型具有较高可靠性。

(2) 采用热压罐成型方法制备了复合材料 C 型制件, 并利用数字化扫描设备测量了制件的固化变形。通过与有限元模型计算结果的比对, 表明本文固化变形预测模型的有效性。

参考文献:

[1] FERNLUND G, OSOOLY A, POURSAITIP 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.

[2] 李君, 姚学锋, 刘应华, 等. 复合材料 T 型整体化结构固化翘曲变形模拟[J]. 复合材料学报, 2009, 26(1): 156-161.

LI J, YAO X F, LIU Y H, et al. Simulation on curing warpage deformation of composite T-shaped integrated structure[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2009, 26(1): 156-161(in Chinese).

[3] YUAN Z, WANG Y, PENG X, et al. An analytical model on through-thickness stresses and warpage of composite laminates due to tool-part interaction[J]. Composites Part B: Engineering, 2016, 91: 408-413.

[4] 元振毅, 王永军, 王俊彪, 等. 基于模具-制件相互作用的复

- 合材料制件固化变形数值模型[J]. 复合材料学报, 2016, 33(4): 902-909.
- YUAN Z Y, WANG Y J, WANG J B, et al. Numerical model on curing deformation of composite part based on tool-part interaction[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2016, 33(4): 902-909 (in Chinese).
- [5] ABOUHAMZE M, SINKE J, BENEDICTUS R. Investigation of curing effects on distortion of fibre metal laminates[J]. *Composite Structures*, 2015, 122(9): 546-552.
- [6] ABOUHAMZE M, SINKE J, BENEDICTUS R. On the prediction of cure-process shape deviations in fibre metal laminates[J]. *Journal of Composite Materials*, 2015, 49(44): 1705-1716.
- [7] WHITE S R, KIM Y K. Process-induced residual stress analysis of AS4/3501-6 composite material[J]. *Mechanics of Composite Materials and Structures*, 1998, 5(2): 153-186.
- [8] 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.
- [9] PRASATHA P, MCKENNA G B, SIMON S L. A viscoelastic model for predicting isotropic residual stresses in thermosetting materials: Effects of processing parameters[J]. *Journal of Composite Materials*, 2001, 35(10): 826-848.
- [10] DING A, LI S, WANG J, et al. A three-dimensional thermo-viscoelastic analysis of process-induced residual stress in composite laminates[J]. *Composite Structures*, 2015, 129: 60-69.
- [11] DING A, LI S, SUN J, et al. A thermo-viscoelastic model of process-induced residual stresses in composite structures with considering thermal dependence[J]. *Composite Structures*, 2016, 136: 34-43.
- [12] ZOBEIRY N, VAZIRI R, POURSAARTIP A. Computationally efficient pseudo-viscoelastic models for evaluation of residual stresses in thermoset polymer composites during cure[J]. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2010, 41(2): 247-256.
- [13] ZOBEIRY N, VAZIRI R, POURSAARTIP A. Differential implementation of the viscoelastic response of a curing thermoset matrix for composites processing[J]. *Journal of Engineering Materials and Technology*, 2006, 128(1): 90-95.
- [14] 李盼. 纤维/树脂复合材料的模内热固化成型及脱模变形的研究[D]. 济南: 山东大学, 2014.
- LI P. Research on heat curing in molds and demoulding deformation of fiber/resin composite[D]. Ji'nan: Shandong University, 2014 (in Chinese).
- [15] BOGETTI T A, GILLESPIE J W. Two-dimensional cure simulation of thick thermosetting composites[J]. *Journal of Composite Materials*, 1991, 25(3): 239-273.
- [16] LOOS A C, SPRINGER G S. Curing of epoxy matrix composites[J]. *Journal of Composite Materials*, 1983, 17(2): 135-169.
- [17] 刘凤岐, 汤心颐. 高分子物理[M]. 北京: 高等教育出版社, 2004.
- LIU F Q, TANG X Y. Polymer physics[M]. Beijing: Higher Education Press, 2004 (in Chinese).
- [18] SCHAFERY R A. Stress analysis of viscoelastic composite materials[J]. *Journal of Composite Materials*, 1967, 1(3): 228-267.
- [19] KIM Y K, WHITE S R. Stress relaxation behavior of 3501-6 epoxy resin during cure[J]. *Polymer Engineering & Science*, 1996, 36(23): 2852-2862.
- [20] LI J, YAO X F, LIU Y H, et al. Thermo-viscoelastic analysis of the integrated T-shaped composite structures[J]. *Composites Science and Technology*, 2010, 70(10): 1497-1503.
- [21] KIM Y K, WHITE S R. Process-induced stress relaxation analysis of AS4/3501-6 laminate[J]. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 1997, 16(1): 2-16.
- [22] BETTS J N, SALO A I T, BOWEN C R, et al. Characterization and modelling of the cured shapes of arbitrary layup bistable composite laminates[J]. *Composite Structures*, 2010, 92(7): 1694-1700.